

# PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2001-302666

(43)Date of publication of application : 31.10.2001

(51)Int.Cl.

C07D487/04

A01N 43/90

(21)Application number : 2000-286572

(71)Applicant : NISSAN CHEM IND LTD

(22)Date of filing : 21.09.2000

(72)Inventor : MIZUKOSHI TAKASHI  
ADACHI TOMOAKI  
MAEDA KANESHIGE  
AKIYAMA SHIGEAKI  
WATANABE SHIGEOMI  
NAKAHIRA KUNIMITSU  
OKI TORU  
HAMADA NOBUYUKI

(30)Priority

Priority number : 11266544  
2000036792

Priority date : 21.09.1999  
15.02.2000

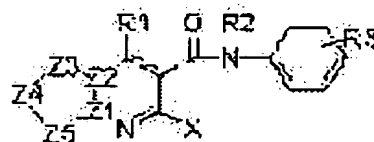
Priority country : JP  
JP

## (54) AZOLE-CONDENSED HETEROCYCLIC ANILIDE COMPOUND AND HERBICIDE

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide an azole-condensed heterocyclic anilide compound and an agrochemical and herbicide containing the compound as an active component based on the new finding that the compound of the present invention having anilide group bonded to a specific site of an azole-condensed heterocyclic group has herbicidal action.

SOLUTION: The objective compound is expressed by formula (I) [Z1-Z2-Z3-Z 4-Z5-Z1 is a bond style such as C-N=C(R4)-C(R5)=C, C-N-N=C(R4)-N=C and C-N-N=N-C(R5)=C; R1 is H, a 1-6C alkyl, a 3-6C cycloalkyl or the like; R2 is H or a 1-6C alkyl; R3 is H, a halogen, nitro, cyano or the like; R4 and R5 are each independently H, a 1-6C alkyl (the alkyl groups of R4 and R5 may together form a 4-7C ring structure), a 3-6C cycloalkyl or the like; X is CO2R10 (R10 is H, a 1-6C alkyl or the like) or the like].



(I)

LEGAL STATUS

BEST AVAILABLE COPY

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2003 Japan Patent Office

(19)日本国特許庁 (J P)

## (12) 公開特許公報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開2001-302666

(P2001-302666A)

(43)公開日 平成13年10月31日(2001.10.31)

(51)Int.Cl. <sup>7</sup>	識別記号	F I	テーマコード(参考)
C 0 7 D 487/04	1 4 2	C 0 7 D 487/04	1 4 2 4 C 0 5 0
	1 4 0		1 4 0 4 H 0 1 1
	1 4 6		1 4 6
A 0 1 N 43/90	1 0 4	A 0 1 N 43/90	1 0 4

審査請求 未請求 請求項の数 5 O L (全 29 頁)

(21)出願番号 特願2000-286572(P2000-286572)

(22)出願日 平成12年9月21日(2000.9.21)

(31)優先権主張番号 特願平11-266544

(32)優先日 平成11年9月21日(1999.9.21)

(33)優先権主張国 日本(J P)

(31)優先権主張番号 特願2000-36792(P2000-36792)

(32)優先日 平成12年2月15日(2000.2.15)

(33)優先権主張国 日本(J P)

(71)出願人 000003986

日産化学工業株式会社

東京都千代田区神田錦町3丁目7番地1

(72)発明者 水越 隆司

千葉県船橋市坪井町722番地1 日産化学工業株式会社中央研究所内

(72)発明者 安達 倫明

千葉県船橋市坪井町722番地1 日産化学工業株式会社中央研究所内

(72)発明者 前田 兼成

千葉県船橋市坪井町722番地1 日産化学工業株式会社中央研究所内

最終頁に続く

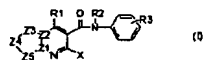
(54)【発明の名称】 アゾール縮合ヘテロ環アニライド化合物及び除草剤

(57)【要約】

【課題】新規除草剤の提供。

【解決手段】式(1)：

【化1】



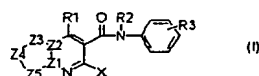
〔式中、Z1-Z2-Z3-Z4-Z5-Z1はC-N-N=C(R4)-C(R5)=C、C-N-N=C(R4)-N=C、C-N-N=N-C(R5)=C等の結合様式を表わし、R1は水素原子、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルキル基、C<sub>7</sub>~C<sub>10</sub>シクロアルキル基等を表わし、R2は水素原子またはC<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルキル基を表わし、R3は水素原子、ハロゲン原子、ニトロ基、シアノ基等を表わし、R4およびR5は、互いに同一でも相異なってもよく、水素原子、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルキル基(これらはR4とR5が一緒になってC<sub>7</sub>~C<sub>10</sub>の環状構造を形成していてもよい。)、C<sub>7</sub>~C<sub>10</sub>シクロアルキル基等を表わし、XはCO<sub>2</sub>R10基(R10は水素原子、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルキル基等を表わす。)等を表わす。〕で示される化合物。

1

【特許請求の範囲】

【請求項 1】式 (1)

【化 1】

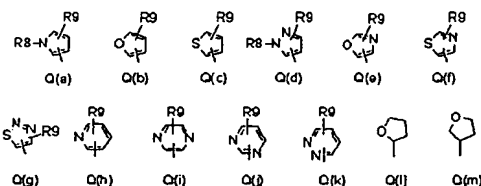


〔式中、Z1-Z2-Z3-Z4-Z5-Z1はC-N-N=C(R4)-C(R5)=C、C-N-N=C(R4)-N=C、C-N-N=N-C(R5)=C、C-N-N=N-N=CまたはN-C=C(R15)-C(R4)=C(R5)-Nの結合様式を表わし、

R1は水素原子、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルキル基、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>シクロアルキル基、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>ハロアルキル基、C<sub>2</sub>~C<sub>6</sub>アルケニル基、C<sub>2</sub>~C<sub>6</sub>ハロアルケニル基、C<sub>2</sub>~C<sub>6</sub>アルキニル基、C<sub>2</sub>~C<sub>6</sub>ハロアルキニル基、Aで置換されていてもよいフェニル基(Aはハロゲン原子、ニトロ基、シアノ基、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルキル基、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>ハロアルキル基、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルコキシ基、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>ハロアルコキシ基、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルコキシカルボニル基、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルキルチオ基及びC<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルキルスルホニル基から選ばれる同一または相異なった1以上の置換基を表わす。)、Aで置換されていてもよいフェニルC<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルキル基、ハロゲン原子、シアノ基、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルコキシ基、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>ハロアルコキシ基、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>シクロアルコキシ基、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルキルチオ基、Aで置換されていてもよいフェニルC<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルキルチオ基、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルキルスルホニル基、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルコキシC<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルキル基、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルキルチオC<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルキル基、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルキルスルホニルC<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルキル基、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルコキシC<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルコキシ基、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルキルチオC<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルコキシ基、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルコキシC<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルキルチオ基、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルキルチオC<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルキルチオ基、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルコキシカルボニル基、N(R6)R7基(R6及びR7は同一でも相異なってもよく、水素原子またはC<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルキル基(これらはR6及びR7が一緒になり、窒素原子を含むC<sub>2</sub>~C<sub>6</sub>の環を形成していてもよい。))を表わす。)、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>ジアルキルアミノC<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルキル基、ヒドロキシ基、ホルミル基、カルボキシル基、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>ジアルキルカルバモイル基、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルキルカルボニル基、ヒドロキシイミノC<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルキル基、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルコキシイミノC<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルキル基またはQ基(Qは以下に示すQ(a)、Q(b)、Q(c)、Q(d)、Q(e)、Q(f)、Q(g)、Q(h)、Q(i)、Q(j)、Q(k)、Q(l)およびQ(m)

【化 2】

2



から選ばれる基を表わす。)を表わし、

R2は水素原子またはC<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルキル基を表わし、

R3は水素原子、ハロゲン原子、ニトロ基、シアノ基、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルキル基、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>ハロアルキル基、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルコキシ基、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>ハロアルコキシ基、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルコキシカルボニル基、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルキルチオ基およびC<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルキルスルホニル基から選ばれる同一または相異なった1以上の置換基を表わし、

R4およびR5は、互いに同一でも相異なってもよく、水素原子、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルキル基(これらはR4とR5が一緒になってC<sub>4</sub>~C<sub>5</sub>の環状構造を形成していてもよい。)、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>シクロアルキル基、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>ハロアルキル基、C<sub>2</sub>~C<sub>6</sub>アルケニル基、C<sub>2</sub>~C<sub>6</sub>ハロアルケニル基、C<sub>2</sub>~C<sub>6</sub>アルキニル基、C<sub>2</sub>~C<sub>6</sub>ハロアルキニル基、Aで置換されていてもよいフェニル基(Aは前記のもの表わす。)、Aで置換されていてもよいフェニルC<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルキル基、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルコキシ基、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>ハロアルコキシ基、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>シクロアルコキシ基、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルキルチオ基、Aで置換されていてもよいフェニルC<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルキルチオ基、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルキルスルホニル基、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>ジアルキルスルファモイル基、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルコキシC<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルキル基、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルキルチオC<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルキル基、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルキルスルホニルC<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルキル基、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルコキシC<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルコキシ基、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルキルチオC<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルコキシ基、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルコキシC<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルキルチオ基、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルキルチオC<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルコキシ基、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルコキシカルボニル基、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>ジアルキルカルバモイル基、N(R6)R7基(R6及びR7はそれぞれ前記のもの表わす。)、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>ジアルキルアミノC<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルキル基、ヒドロキシ基、ホルミル基、カルボキシル基、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルキルカルボニル基、ヒドロキシイミノC<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルキル基またはC<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルコキシイミノC<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルキル基を表わし、

R8は水素原子、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルキル基またはAで置換されていてもよいフェニル基(Aは前記と同様の意味を表わす。)を表わし、

R9は水素原子、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルキル基、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>シクロアルキル基、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>ハロアルキル基、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルコキシ基、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>ハロアルコキシ基、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルキルチオ基、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルキルスルホニル基、ハロゲン原子、ニトロ基およびシアノ基から選ばれる同一または相異なった1以上の置換基を表わし、

XはCO<sub>2</sub>R10基(R10は水素原子、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルキル基、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>ハロアルキル基、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>シクロアルキル基、C<sub>2</sub>~C<sub>6</sub>アルケニル基、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>ハロアルケニル基、C<sub>2</sub>~C<sub>6</sub>アルキニル基、C<sub>2</sub>~C<sub>6</sub>ハロアルキニル基、Aで置換されていてもよいフェニル基、Aで置換されていてもよいフェニルC<sub>1</sub>~C<sub>4</sub>アルキル基またはC<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルコキシカルボニルC<sub>1</sub>~C<sub>4</sub>アルキル基を表わす。)、CON(R11)R12基(R11およびR12は同一でも相異なっているいてもよく、水素原子、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルキル基(これらは、R11とR12が一緒になり、Nを含むC<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>の環を形成しているてもよい。)、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>ハロアルキル基、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>シクロアルキル基、C<sub>2</sub>~C<sub>6</sub>アルケニル基、C<sub>2</sub>~C<sub>6</sub>ハロアルケニル基、C<sub>2</sub>~C<sub>6</sub>アルキニル基、C<sub>2</sub>~C<sub>6</sub>ハロアルキニル基、Aで置換されていてもよいフェニル基またはAで置換されていてもよいフェニルC<sub>1</sub>~C<sub>4</sub>アルキル基を表わす。)、CON(R13)N(R11)R12基(R13は水素原子、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルキル基またはC<sub>2</sub>~C<sub>6</sub>アルケニル基を表わし、R11およびR12はそれぞれ前記と同様の意味を表わす。)またはCON(R13)OR14基(R14は水素原子、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルキル基、C<sub>2</sub>~C<sub>6</sub>アルケニル基、C<sub>2</sub>~C<sub>6</sub>アルキニル基、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>ハロアルキル基、C<sub>2</sub>~C<sub>6</sub>ハロアルケニル基、C<sub>2</sub>~C<sub>6</sub>ハロアルキニル基またはC<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>シクロアルキル基を表わし、R13は前記のものを表わす。)を表わし、R15は水素原子またはC<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルキル基を表わす。)で示される化合物。

【請求項2】Z1-Z2-Z3-Z4-Z5-Z1がC-N-N=C(R4)-C(R5)の結合様式を表わし、

R1が水素原子、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルキル基、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>ハロアルキル基、Aで置換されていてもよいフェニル基(Aは前記のものを表わす。)、ハロゲン原子、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルコキシ基、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルコキシC<sub>1</sub>~C<sub>4</sub>アルキル基、N(R6)R7基(R6およびR7はそれぞれ前記のものを表わす)またはQ基(Qは前記のものを表わす。)を表わし、

R2が水素原子を表わし、

R3は水素原子、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルキル基、ハロゲン原子およびシアノ基から選ばれる同一または相異なっているてもよい1以上の置換基を表わし、

R4およびR5は、互いに同一でも相異なっているてもよく、水素原子、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルキル基(これらはR4とR5が一緒になってC<sub>4</sub>~C<sub>7</sub>の環状構造を形成しているてもよい。)、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>ハロアルキル基、ハロゲン原子、シアノ基、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルコキシ基、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルキルチオ基、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルキルスルホニル基、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルコキシC<sub>1</sub>~C<sub>4</sub>アルキル基またはN(R6)R7基(R6及びR7はそれぞれ前記のものを表わす。)を表わし、

R8がC<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルキル基を表わし、

R9が水素原子、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルコキシ基またはハロゲン原子を表わし、

R10がC<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルキル基を表わす、請求項1記載の化合物。

【請求項3】Z1-Z2-Z3-Z4-Z5-Z1がN-C=C(R15)-C(R4)=C(R5)-Nの結合様式を表わし、

R1が水素原子またはC<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルキル基を表わし、

R2が水素原子を表わし、

10 R3は水素原子、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルキル基、ハロゲン原子およびシアノ基から選ばれる同一または相異なっているてもよい1以上の置換基を表わし、

R4およびR5は、互いに同一でも相異なっているてもよく、水素原子、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルキル基(これらはR4とR5が一緒になってC<sub>4</sub>~C<sub>7</sub>の環状構造を形成しているてもよい。)、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>ハロアルキル基、ハロゲン原子、シアノ基、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルコキシ基、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルキルチオ基、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルキルスルホニル基、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルコキシC<sub>1</sub>~C<sub>4</sub>アルキル基またはN(R6)R7基(R6及びR7はそれぞれ前記のものを表わす。)を表わし、

R8がC<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルキル基を表わし、

R9が水素原子、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルコキシ基またはハロゲン原子を表わし、

R10がC<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルキル基を表わし、

R15が水素原子またはC<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルキル基を表わす、請求項1記載の化合物。

【請求項4】請求項1記載の化合物を含有することを特徴とする農薬。

30 【請求項5】請求項1記載の化合物を含有することを特徴とする除草剤。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、アゾール縮合ヘテロ環アニライド化合物およびそれを有効成分として含有する農薬、除草剤に関するものである。

【0002】

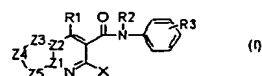
【従来の技術及び課題】アゾール縮合ヘテロ環の特定の位置にアニライド基が結合した本願発明の化合物群が除草作用を示すことは従来知られていない。

40 【0003】

【課題を解決するための手段】本発明者らは、新規なアニライド化合物の除草作用について鋭意検討した結果、下記式で示される化合物群が優れた除草作用を有することを見だし、本発明を完成させるに至った。すなわち、本発明は式(1)

【0004】

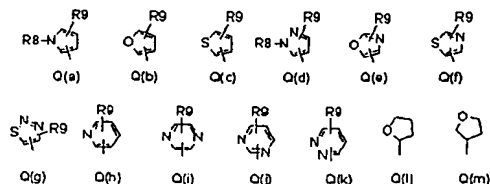
【化3】



【0005】〔式中、Z1-Z2-Z3-Z4-Z5-Z1はC-N-N=C(R4)-C(R5)=C、C-N-N=C(R4)-N=C、C-N-N=N-C(R5)=C、C-N-N=N-N=CまたはN-C=C(R15)-C(R4)=C(R5)-Nの結合様式を表わし、R1は水素原子、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルキル基、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>シクロアルキル基、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>ハロアルキル基、C<sub>2</sub>~C<sub>6</sub>アルケニル基、C<sub>2</sub>~C<sub>6</sub>ハロアルケニル基、C<sub>2</sub>~C<sub>6</sub>アルキニル基、C<sub>2</sub>~C<sub>6</sub>ハロアルキニル基、Aで置換されていてもよいフェニル基(Aはハロゲン原子、ニトロ基、シアノ基、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルキル基、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>ハロアルキル基、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルコキシ基、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>ハロアルコキシ基、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルコキシカルボニル基、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルキルチオ基及びC<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルキルスルホニル基から選ばれる同一または相異なった1以上の置換基を表わす。)、Aで置換されていてもよいフェニルC<sub>1</sub>~C<sub>4</sub>アルキル基、ハロゲン原子、シアノ基、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルコキシ基、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>ハロアルコキシ基、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>シクロアルコキシ基、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルキルチオ基、Aで置換されていてもよいフェニルC<sub>1</sub>~C<sub>4</sub>アルキルチオ基、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルキルスルホニル基、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルコキシC<sub>1</sub>~C<sub>4</sub>アルキル基、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルキルチオC<sub>1</sub>~C<sub>4</sub>アルキル基、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルキルスルホニルC<sub>1</sub>~C<sub>4</sub>アルキル基、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルコキシC<sub>1</sub>~C<sub>4</sub>アルコキシ基、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルキルチオC<sub>1</sub>~C<sub>4</sub>アルコキシ基、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルコキシC<sub>1</sub>~C<sub>4</sub>アルキルチオ基、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルキルチオC<sub>1</sub>~C<sub>4</sub>アルキルチオ基、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルコキシカルボニル基、N(R6)R7基(R6及びR7は同一でも相異なってもよく、水素原子またはC<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルキル基(これらはR6及びR7が一緒になり、窒素原子を含むC<sub>2</sub>~C<sub>6</sub>の環を形成していてもよい。))を表わす。)、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>ジアルキルアミノC<sub>1</sub>~C<sub>4</sub>アルキル基、ヒドロキシ基、ホルミル基、カルボキシル基、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>ジアルキルカルバモイル基、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルキルカルボニル基、ヒドロキシイミノC<sub>1</sub>~C<sub>4</sub>アルキル基、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルコキシイミノC<sub>1</sub>~C<sub>4</sub>アルキル基またはQ基(Qは以下に示すQ(a)、Q(b)、Q(c)、Q(d)、Q(e)、Q(f)、Q(g)、Q(h)、Q(i)、Q(j)、Q(k)、Q(l)およびQ(m))

【0006】

〔化4〕



【0007】から選ばれる基を表わす。)を表わし、R2は水素原子またはC<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルキル基を表わし、R3は水素原子、ハロゲン原子、ニトロ基、シアノ基、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルキル基、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>ハロアルキル基、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>シクロアルキル基、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>ハロアルコキシ基、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルキルチオ基、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルキルスルホニル基、ハロゲン原子、ニトロ基およびシアノ基から選ばれる同一または相異なった1以上の置換基を表わし、XはCO<sub>2</sub>R10基(R10は水素原子、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルキル基、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>ハロアルキル基、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>シクロアルキル基、C<sub>2</sub>~C<sub>6</sub>アルケニル基、C<sub>2</sub>~C<sub>6</sub>ハロアルケニル基、C<sub>2</sub>~C<sub>6</sub>アルキニル基、C<sub>2</sub>~C<sub>6</sub>ハロアルキニル基、Aで置換されていてもよいフェニル基、Aで置換されていてもよいフェニルC<sub>1</sub>~C<sub>4</sub>アルキル基またはC<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルコキシカルボニルC<sub>1</sub>~C<sub>4</sub>アルキル基を表わす。)、CON(R11)R12基(R11およびR12は同一でも相異なってもよく、水素原子、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルキル基(これらは、R11とR12が一緒になり、Nを含むC<sub>2</sub>~C<sub>6</sub>の環を形成していてもよ

~C<sub>6</sub>アルキル基、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>ハロアルキル基、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルコキシ基、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>ハロアルコキシ基、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルコキシカルボニル基、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルキルチオ基およびC<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルキルスルホニル基から選ばれる同一または相異なった1以上の置換基を表わし、R4およびR5は、互いに同一でも相異なってもよく、水素原子、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルキル基(これらはR4とR5が一緒になってC<sub>4</sub>~C<sub>7</sub>の環状構造を形成していてもよい。)、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>シクロアルキル基、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>ハロアルキル基、C<sub>2</sub>~C<sub>6</sub>アルケニル基、C<sub>2</sub>~C<sub>6</sub>ハロアルケニル基、C<sub>2</sub>~C<sub>6</sub>アルキニル基、C<sub>2</sub>~C<sub>6</sub>ハロアルキニル基、Aで置換されていてもよいフェニル基(Aは前記のものを表わす。)、Aで置換されていてもよいフェニルC<sub>1</sub>~C<sub>4</sub>アルキル基、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルコキシ基、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>ハロアルコキシ基、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>シクロアルコキシ基、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルキルチオ基、Aで置換されていてもよいフェニルC<sub>1</sub>~C<sub>4</sub>アルキルチオ基、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルキルスルホニル基、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>ジアルキルスルファモイル基、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルコキシC<sub>1</sub>~C<sub>4</sub>アルキル基、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルキルチオC<sub>1</sub>~C<sub>4</sub>アルキル基、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルキルスルホニルC<sub>1</sub>~C<sub>4</sub>アルキル基、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルコキシC<sub>1</sub>~C<sub>4</sub>アルコキシ基、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルキルチオC<sub>1</sub>~C<sub>4</sub>アルコキシ基、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルコキシC<sub>1</sub>~C<sub>4</sub>アルキルチオ基、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルキルチオC<sub>1</sub>~C<sub>4</sub>アルキルチオ基、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルコキシカルボニル基、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>ジアルキルカルバモイル基、N(R6)R7基(R6及びR7はそれぞれ前記のものを表わす。)、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>ジアルキルアミノC<sub>1</sub>~C<sub>4</sub>アルキル基、ヒドロキシ基、ホルミル基、カルボキシル基、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルキルカルボニル基、ヒドロキシイミノC<sub>1</sub>~C<sub>4</sub>アルキル基またはC<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルコキシイミノC<sub>1</sub>~C<sub>4</sub>アルキル基を表わし、R8は水素原子、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルキル基またはAで置換されていてもよいフェニル基(Aは前記と同様の意味を表わす。))を表わし、R9は水素原子、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルキル基、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>シクロアルキル基、C<sub>2</sub>~C<sub>6</sub>ハロアルコキシ基、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルキルチオ基、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルキルスルホニル基、ハロゲン原子、ニトロ基およびシアノ基から選ばれる同一または相異なった1以上の置換基を表わし、XはCO<sub>2</sub>R10基(R10は水素原子、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルキル基、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>ハロアルキル基、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>シクロアルキル基、C<sub>2</sub>~C<sub>6</sub>アルケニル基、C<sub>2</sub>~C<sub>6</sub>ハロアルケニル基、C<sub>2</sub>~C<sub>6</sub>アルキニル基、C<sub>2</sub>~C<sub>6</sub>ハロアルキニル基、Aで置換されていてもよいフェニル基、Aで置換されていてもよいフェニルC<sub>1</sub>~C<sub>4</sub>アルキル基またはC<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルコキシカルボニルC<sub>1</sub>~C<sub>4</sub>アルキル基を表わす。)、CON(R11)R12基(R11およびR12は同一でも相異なってもよく、水素原子、C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub>アルキル基(これらは、R11とR12が一緒になり、Nを含むC<sub>2</sub>~C<sub>6</sub>の環を形成していてもよ

い。)、 $C_1 \sim C_6$ ハロアルキル基、 $C_3 \sim C_6$ シクロアルキル基、 $C_2 \sim C_6$ アルケニル基、 $C_2 \sim C_6$ ハロアルケニル基、 $C_2 \sim C_6$ アルキニル基、 $C_2 \sim C_6$ ハロアルキニル基、Aで置換されていてもよいフェニル基またはAで置換されていてもよいフェニル $C_1 \sim C_4$ アルキル基を表わす。)、CON(R13)N(R11)R12基(R13は水素原子、 $C_1 \sim C_6$ アルキル基または $C_2 \sim C_6$ アルケニル基を表わし、R11およびR12はそれぞれ前記と同様の意味を表わす。)またはCON(R13)OR14基(R14は水素原子、 $C_1 \sim C_6$ アルキル基、 $C_2 \sim C_6$ アルケニル基、 $C_2 \sim C_6$ アルキニル基、 $C_1 \sim C_6$ ハロアルキル基、 $C_2 \sim C_6$ ハロアルケニル基、 $C_2 \sim C_6$ ハロアルキニル基または $C_3 \sim C_6$ シクロアルキル基を表わし、R13は前記のもの表わす。)を表わし、R15は水素原子または $C_1 \sim C_6$ アルキル基を表わす。)で示される新規なアゾール縮合ヘテロ環アニライド化合物(以下、本発明化合物と称する。)、そしてそれらを有効成分として含有することを特徴とする農薬、特に除草剤に関するものである。但し、以上の化合物に光学異性体、ジアステレオマー、幾何異性体が存在する場合は、それぞれの混合物および単離された異性体の双方を包含する。

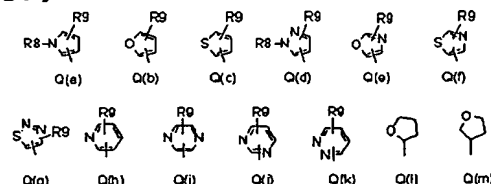
## 【0008】

【発明の実施の形態】本発明化合物の一般式(1)において、R1としては水素原子、メチル基、エチル基、プロピル基、i-プロピル基、ブチル基、t-ブチル基、ペンチル基、ヘキシル基、c-プロピル基、c-ペンチル基、c-ヘキシル基、トリクロロメチル基、トリフルオロメチル基、ジフルオロメチル基、フルオロメチル基、クロロジフルオロメチル基、2,2,2-トリフルオロエチル基、アリル基、クロチル基、3-クロロ-2-プロペニル基、プロパルギル基、フェニル基、ベンジル基、塩素原子、臭素原子、フッ素原子、ヨウ素原子、シアノ基、メトキシ基、エトキシ基、プロポキシ基、ジフルオロメトキシ基、クロロジフルオロメトキシ基、トリフルオロメトキシ基、シクロプロピルオキシ基、メチルチオ基、エチルチオ基、メタンスルホニル基、エタンスルホニル基、メトキシメチル基、メチルチオメチル基、メタンスルホニルメチル基、メチルチオメチルチオ基、メトキシカルボニル基、エトキシカルボニル基、アミノ基、メチルアミノ基、エチルアミノ基、プロピルアミノ基、ジメチルアミノ基、N-メチルエチルアミノ基、ジエチルアミノ基、ピロリジノ基、ピペリジノ基、ジメチルアミノメチル基、ジエチルアミノメチル基、ヒドロキシ基、ホルミル基、カルボキシル基、ジメチルカルバモイル基、ジエチルカルバモイル基、アセチル基、プロピオニル基、ヒドロキシイミノメチル基、1-(ヒドロキシイミノ)エチル基、メトキシイミノメチル基、1-(メトキシイミノ)エチル基、エトキシイミノメチル基、1-(エトキシイミノ)エチル基Q(a)、Q

(b)、Q(c)、Q(d)、Q(e)、Q(f)、Q(g)、Q(h)、Q(i)、Q(j)、Q(k)、Q(l)またはQ(m)

## 【0009】

## 【化5】



【0010】が挙げられ、好ましくは水素原子、メチル基、c-プロピル基、ジフルオロメチル基、フルオロメチル基、フェニル基、塩素原子、フッ素原子、シアノ基、メトキシ基、ジフルオロメトキシ基、メチルチオ基、メタンスルホニル基、メトキシメチル基、メチルチオメチル基、メタンスルホニルメチル基、メチルアミノ基、エチルアミノ基、ジメチルアミノ基、ジメチルアミノメチル基またはQ(h)基が挙げられる。

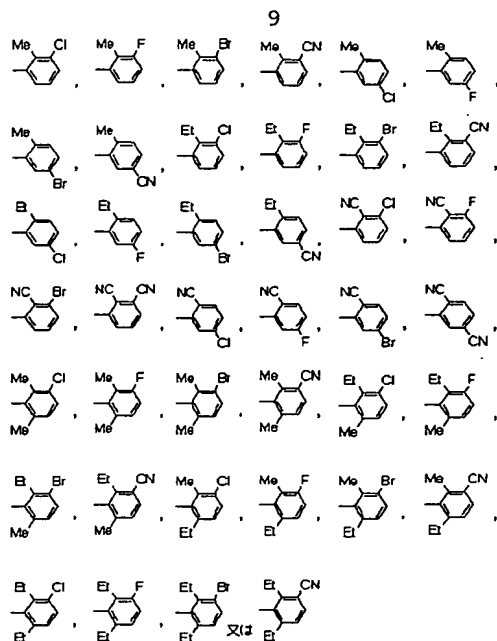
【0011】R2としては水素原子、メチル基、エチル基、プロピル基またはi-プロピル基が挙げられ、好ましくは水素原子が挙げられる。

【0012】R3としては水素原子、塩素原子、臭素原子、フッ素原子、ヨウ素原子、ニトロ基、シアノ基、メチル基、エチル基、プロピル基、i-プロピル基、トリフルオロメチル基、2,2,2-トリフルオロエチル基、メトキシ基、エトキシ基、トリフルオロメトキシ基、メトキシカルボニル基、エトキシカルボニル基、メチルチオ基またはメタンスルホニル基が挙げられ、好ましくは水素原子、塩素原子、臭素原子、フッ素原子、シアノ基、メチル基、エチル基またはトリフルオロメチル基が挙げられる。

【0013】R3の置換位置としては、アニライド結合に対して2位、3位、4位、5位または6位が、置換数としてはモノ置換、ジ置換、トリ置換またはテトラ置換が挙げられ、好ましくは以下の置換様式が挙げられる。

## 【0014】

## 【化6】



【0015】R4およびR5としては、同一でも相異なってもよく、水素原子、メチル基、エチル基、プロピル基、i-プロピル基、 $-(CH_2)_3-$ 、 $-(CH_2)_4-$ 、 $-(CH_2)_5-$ 、シクロプロピル基、トリフルオロメチル基、フェニル基、4-クロロフェニル基、4-フルオロフェニル基、2-フルオロフェニル基、ベンジル基、塩素原子、臭素原子、フッ素原子、ヨウ素原子、シアノ基、ニトロ基、メトキシ基、エトキシ基、ジフルオロメトキシ基、メチルチオ基、メタンスルホニル基、ジメチルスルファモイル基、メトキシメチル基、メチルチオメチル基、メトキシカルボニル基、エトキシカルボニル基、ジメチルカルバモイル基、ジメチルアミノ基、ジメチルアミノメチル基、ヒドロキシ基、ホルミル基、カルボキシ基、アセチル基、プロピオニル基、ヒドロキシイミノメチル基、1-(ヒドロキシイミノ)エチル基、メトキシイミノメチル基、1-(メトキシイミノ)エチル基、エトキシイミノメチル基または1-(エトキシイミノ)エチル基が挙げられ、好ましくは水素原子、メチル基、 $-(CH_2)_3-$ 、トリフルオロメチル基、塩素原子、臭素原子、フッ素原子、シアノ基、メトキシ基、メチルチオ基、メタンスルホニル基、メトキシメチル基、メチルチオメチル基またはメトキシカルボニル基が挙げられる。

【0016】R6およびR7としては、互いに同一でも相異なってもよく、水素原子、メチル基、エチル基、プロピル基またはi-プロピル基が挙げられ、好ましくは水素原子、メチル基またはエチル基が挙げられる。

【0017】R8としては水素原子、メチル基、エチル基、プロピル基またはi-プロピル基が挙げられ、好ましくはメチル基が挙げられる。

【0018】R9としては水素原子、メチル基、エチル基、プロピル基、i-プロピル基、シクロプロピル基、トリフルオロメチル基、トリクロロメチル基、メトキシ基、エトキシ基、ジフルオロメトキシ基、メチルチオ基、エチルチオ基、メタンスルホニル基、エタンスルホニル基、塩素原子、臭素原子、フッ素原子、ヨウ素原子、ニトロ基またはシアノ基が挙げられ、好ましくは水素原子、メチル基、トリフルオロメチル基、メトキシ基、メチルチオ基、メタンスルホニル基、塩素原子、フッ素原子またはシアノ基が挙げられる。

【0019】R10としては水素原子、メチル基、エチル基、プロピル基、i-プロピル基、ブチル基、ペンチル基、ヘキシル基、2,2,2-トリフルオロエチル基、シクロプロピル基、シクロペンチル基、アリル基、プロパルギル基、フェニル基、ベンジル基、メトキシカルボニルメチル基またはエトキシカルボニルメチル基が挙げられ、好ましくはメチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基またはペンチル基が挙げられる。

【0020】R11およびR12としては、同一でも相異なってもよく、水素原子、メチル基、エチル基、プロピル基、i-プロピル基、ブチル基、i-ブチル基、s-ブチル基、t-ブチル基、ペンチル基、ヘキシル基、 $-(CH_2)_2-$ 基、 $-(CH_2)_3-$ 基、 $-(CH_2)_4-$ 基、 $-(CH_2)_5-$ 基、 $-(CH_2)_6-$ 基、トリクロロメチル基、トリフルオロメチル基、2,2,2-トリフルオロエチル基、2-クロロエチル基、2-フルオロエチル基、3-クロロプロピル基、3-フルオロプロピル基、シクロプロピル基、シクロプロピルメチル基、シクロペンチル基、シクロヘキシル基、アリル基、メタリル基、クロチル基、3-クロロ-2-プロペニル基、3,3-ジクロロ-2-プロペニル基、プロパルギル基、1-メチル-2-プロピニル基、1,1-ジメチル-2-プロピニル基、2-ブチニル基、フェニル基またはベンジル基が挙げられ、好ましくは水素原子、メチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基、i-ブチル基、s-ブチル基、ペンチル基、 $-(CH_2)_2-$ 基、2,2,2-トリフルオロエチル基、2-フルオロエチル基、3-クロロプロピル基、3-フルオロプロピル基、シクロプロピル基、シクロプロピルメチル基、シクロペンチル基、アリル基またはプロパルギル基が挙げられる。

【0021】R13としては水素原子、メチル基、エチル基、i-プロピル基またはアリル基が挙げられ、好ましくは水素原子またはメチル基が挙げられる。

【0022】R14としては水素原子、メチル基、エチル基、プロピル基、i-プロピル基、ブチル基、i-ブチル基、s-ブチル基、t-ブチル基、ペンチル基、ヘキシル基、アリル基、プロパルギル基、3-クロロ-2-プロペニル基、シクロプロピル基、シクロプロピルメチル基またはシクロペンチル基が挙げられ、好ましくは



11

メチル基、エチル基、プロピル基、アリル基、シクロプロピル基またはシクロプロピルメチル基が挙げられる。

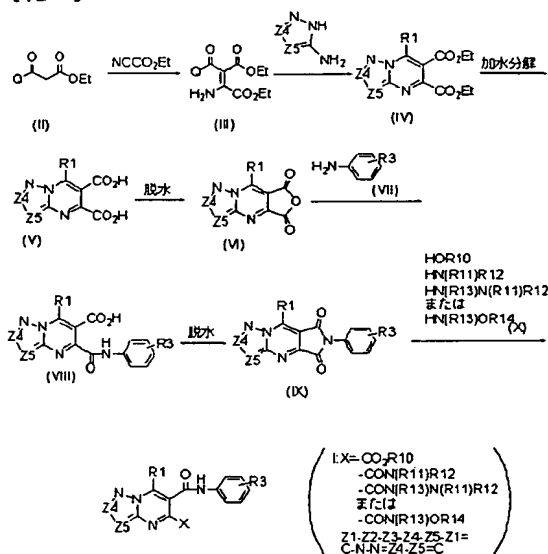
【0023】R15としては水素原子、メチル基、エチル基またはプロピル基が挙げられる。

【0024】本発明化合物(Ⅰ)は、たとえばスキーム1および2に示す方法で合成することができる。

【0025】スキーム1および2のR1、R3、Z1、Z2、R10、R11、R12、R13、R14、R15およびXは、それぞれ前記と同様の意味を表わす。

【0026】

【化7】



【0027】(スキーム1)β-ケトエステル(ⅠⅠ)とシアノ蟻酸エステルとの付加反応によりエナミン(ⅠⅠⅠ)とする。次いで、アミノアゾールとの反応によりアゾール縮合ピリジンカルボン酸ジエチル(ⅠⅣ)とする。エステルを加水分解してジカルボン酸(Ⅴ)とした後、脱水して酸無水物(Ⅵ)とし、アニリン(ⅦⅠ)と反応させることによりアニリド(ⅦⅠⅠ)とする。さらに脱水してイミド(ⅠⅩ)とし、各種の求核剤(X)と反応させることにより、本発明化合物(Ⅰ：XがCO<sub>2</sub>R16、CON(R11)R12、CON(R13)N(R11)R12またはCON(R13)OR14で、Z1-Z2-Z3-Z4-Z5-Z1がC-N-N=N-Z4-Z5=Cの場合。)を合成することができる。

【0028】β-ケトエステル(ⅠⅠ)は、たとえばSynthesis、1993、1993(3)、290などを参考にして合成することができる。また、エナミン(ⅠⅠⅠ)は、例えばJ. Mol. Catalysis、54、73(1989)や、Journal of Organic Chemistry、48、383

12

3(1983)などを参考にして合成することが出来る。

【0029】化合物(ⅠⅠⅠ)から化合物(ⅠⅣ)への縮合環化反応で使用する溶媒としては、たとえばベンゼン、トルエン、キシレンなどの芳香族炭化水素類、ジクロロメタン、クロロホルム、四塩化炭素などのハロゲン化炭化水素類、アセトニトリル、N、N-ジメチルホルムアミドなどの非プロトン性極性溶媒類、ジエチルエーテル、テトラヒドロフラン、ジオキサンなどのエーテル類、アセトン、メチルエチルケトンなどのケトン類、メタノール、エタノールなどのアルコール類が挙げられ、好ましくはテトラヒドロフラン、ジオキサンなどのエーテル類またはメタノール、エタノールなどのアルコール類が挙げられる。

【0030】反応温度は室温ないし溶媒の沸点域から選択すればよく、反応時間は反応温度、反応規模により一定しないが、数分ないし48時間の範囲で行えばよい。好ましくは30分から5時間の範囲がよい。

【0031】反応終了後、目的物を単離し、必要に応じて再結晶、蒸留、カラムクロマトグラフィーなどの精製手段によって目的物を精製することができるが、目的物を単離せず、そのまま次の反応に進んでもよい。

【0032】化合物(ⅠⅣ)から化合物(Ⅴ)への加水分解反応で使用する溶媒としては、たとえばメタノール、エタノールなどのアルコール類、ジクロロメタン、クロロホルム、四塩化炭素などのハロゲン化炭化水素類、ベンゼン、トルエン、キシレンなどの芳香族炭化水素類、アセトニトリル、N、N-ジメチルホルムアミドなどの極性非プロトン性溶媒類、ジエチルエーテル、テトラヒドロフラン、ジオキサンなどのエーテル類またはアセトン、メチルエチルケトンなどのケトン類が挙げられ、好ましくはメタノール、エタノールなどのアルコール類が挙げられる。これらの溶媒は単独で、また混合して使用することもできる。

【0033】加水分解の触媒としては、たとえば水酸化ナトリウム、水酸化カリウム、炭酸ナトリウム、炭酸カリウム、炭酸水素ナトリウム、炭酸水素カリウムなどの無機塩基類、塩酸、硫酸などの鉱酸類が挙げられ、好ましくは水酸化ナトリウムまたは水酸化カリウムを使用することができる。これらの触媒の使用量は、化合物(ⅠⅣ)に対して0.1ないし過剰モル使用するのがよく、好ましくは等モルないし2倍モル使用するのがよい。

【0034】反応温度は-10℃ないし不活性溶媒の沸点域から選択すればよく、好ましくは室温ないし120℃の範囲で行えばよい。反応時間は反応温度、反応規模等により一定しないが、数分ないし48時間の範囲で行えばよく、好ましくは30分ないし5時間で行うのがよい。また、目的物は必要に応じて抽出、再結晶、カラムクロマトグラフィー、蒸留等の単離手段により精製できるが、特に精製を行わず、そのまま次の反応に供するこ



15

Z2-Z3-Z4-Z5-Z1がC-N-N=Z4-Z5=Cの場合。)への合成反応に用いる条件と同様に反応を行うことが出来る。酸無水物(X1)は、例えば、特開平6-184154号公報などを参考に合成することが出来る。

【0053】

【実施例】以下、本発明化合物およびその中間体の合成例を実施例として具体的に述べるが、本発明はこれらによって限定されるものではない。

【実施例1】

【1-1】7-メチルピラゾロ[1,5-a]ピリミジン-5,6-ジカルボン酸ジエチルの合成

【0054】

【化9】

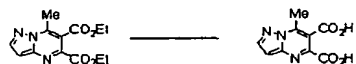


【0055】2-アミノ-3-エトキシカルボニル-4-オキソペンテノイックアシッドエチルエステル7g (30.6mmol)と3-アミノピラゾール2.6g (31.3mmol)を1,4-ジオキサン5ml溶媒中で2時間加熱還流した。反応終了後、室温まで戻し、減圧下で溶媒を留去することにより7-メチルピラゾロ[1,5-a]ピリミジン-5,6-ジカルボン酸ジエチルの粗油状物を得た。これは精製せず、次の反応に用いた。

【1-2】7-メチルピラゾロ[1,5-a]ピリミジン-5,6-ジカルボン酸の合成

【0056】

【化10】

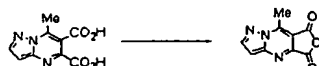


【0057】【1-1】で得られた7-メチルピラゾロ[1,5-a]ピリミジン-5,6-ジカルボン酸ジエチルをエタノール60mlに溶かし、水酸化ナトリウム水溶液(NaOH/H<sub>2</sub>O=2.4g/60ml)を加え、室温で3時間攪拌した。反応終了後、減圧下で大部分のエタノールを留去し、残った水溶液に濃塩酸を加えてpH2とした。析出した結晶を濾取し、減圧乾燥することにより、7-メチルピラゾロ[1,5-a]ピリミジン-5,6-ジカルボン酸1.95gを得た。融点184°C(分解)。

【1-3】7-メチルピラゾロ[1,5-a]ピリミジン-5,6-ジカルボン酸無水物の合成

【0058】

【化11】



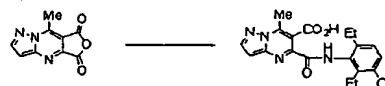
16

【0059】7-メチルピラゾロ[1,5-a]ピリミジン-5,6-ジカルボン酸1.5gおよび無水酢酸15mlの混合物を、110°Cで30分間攪拌した。反応終了後、酢酸および過剰の無水酢酸を減圧留去することにより、7-メチルピラゾロ[1,5-a]ピリミジン-5,6-ジカルボン酸無水物を得た。得られた無水物は精製することなく次の反応に用いた。

【1-4】7-メチル-5-(3-クロロ-2,6-ジエチルフェニルアミノカルボニル)ピラゾロ[1,5-a]ピリミジン-6-カルボン酸の合成

【0060】

【化12】



【0061】【1-3】で得られた7-メチルピラゾロ[1,5-a]ピリミジン-5,6-ジカルボン酸無水物をテトラヒドロフラン30mlに溶かし、そこへ3-クロロ-2,6-ジエチルアニリン1.5gを加え、室温で3時間攪拌した。反応終了後、溶媒を減圧留去し、析出した結晶をヘキサンとジエチルエーテルとの混合溶媒にて洗浄し、減圧乾燥することにより、7-メチル-5-(3-クロロ-2,6-ジエチルフェニルアミノカルボニル)ピラゾロ[1,5-a]ピリミジン-6-カルボン酸1.5gを得た。

【1-5】7-メチル-N-(3-クロロ-2,6-ジエチルフェニル)ピラゾロ[1,5-a]ピリミジン-5,6-ジカルボキシイミドの合成

【0062】

【化13】

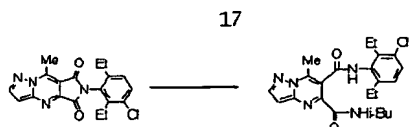


【0063】7-メチル-5-(3-クロロ-2,6-ジエチルフェニルアミノカルボニル)ピラゾロ[1,5-a]ピリミジン-6-カルボン酸1.5gを無水酢酸30ml中、約20mg(触媒量)の酢酸ナトリウム存在下、110°Cで30分間攪拌した。反応終了後、酢酸および過剰の無水酢酸を留去し、クロロホルムを展開溶媒とするシリカゲルカラムクロマトグラフィーにより精製し、7-メチル-N-(3-クロロ-2,6-ジエチルフェニル)ピラゾロ[1,5-a]ピリミジン-5,6-ジカルボキシイミド1.3gを得た。

【1-6】7-メチル-6-(3-クロロ-2,6-ジエチルフェニルアミノカルボニル)ピラゾロ[1,5-a]ピリミジン-5-カルボン酸-i-ブチルアミド(化合物1-3)の合成

【0064】

【化14】



【0065】7-メチル-N-(3-クロロ-2,6-ジエチルフェニル)ピラゾロ[1,5-a]ピリミジン-5,6-ジカルボキシイミド0.6g(1.6mmol)を1,4-ジオキサン20mlに溶かし、そこへイソブチルアミン0.2g(2.7mmol)を加え、室温で2時間攪拌した。反応終了後、溶媒および過剰のイソブチルアミンを減圧留去し、析出した固体をジエチルエーテルと少量のクロロホルム溶液で洗浄し、減圧乾燥することによって、7-メチル-6-(3-クロロ-2,6-ジエチルフェニルアミノカルボニル)ピラゾロ[1,5-a]ピリミジン-5-カルボン酸-i-ブチルアミド0.6gを得た。

融点277-279℃

(実施例2)

【2-1】2-(3-クロロ-2,6-ジエチルフェニルアミノカルボニル)ピロロ[1,2-b]ピリダジン-3-カルボン酸の合成

【0066】

【化15】



【0067】ピロロ[1,2-b]ピリダジン-2,3-ジカルボン酸無水物0.60gをテトラヒドロフラン20mlに溶かし、そこへ氷冷下で3-クロロ-2,6-ジエチルアニリン0.59gを加えた。その混合物を室温で一晩攪拌した後、さらに加熱還流下で10時間攪拌した。反応終了後、溶媒を減圧留去し、クロロホルムと酢酸エチルとの混合溶媒を展開溶媒とするシリカゲルカラムクロマトグラフィーにより精製し、溶媒を減圧留去した。さらに析出した結晶をジエチルエーテルにて洗浄し、減圧乾燥することにより、2-(3-クロロ-2,6-ジエチルフェニルアミノカルボニル)ピロロ[1,2-b]ピリダジン-3-カルボン酸1.0gを得た。

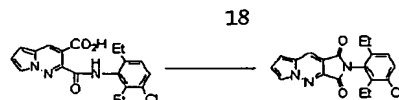
【2-2】N-(3-クロロ-2,6-ジエチルフェニル)ピロロ[1,2-b]ピリダジン-2,3-ジカルボキシイミドの合成

【0068】

【化16】

\*

\*

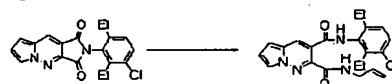


【0069】2-(3-クロロ-2,6-ジエチルフェニルアミノカルボニル)ピロロ[1,2-b]ピリダジン-3-カルボン酸0.90gを無水酢酸10ml中、120℃で15分間攪拌した。反応終了後、溶媒を留去し、析出した結晶をジエチルエーテルにて洗浄し、減圧乾燥することにより、N-(3-クロロ-2,6-ジエチルフェニル)ピロロ[1,2-b]ピリダジン-2,3-ジカルボキシイミド0.82gを得た。

【2-3】3-(3-クロロ-2,6-ジエチルフェニルアミノカルボニル)ピロロ[1,2-b]ピリダジン-2-カルボン酸アリルアミド(化合物No.2-5)の合成

【0070】

【化17】



【0071】N-(3-クロロ-2,6-ジエチルフェニル)ピロロ[1,2-b]ピリダジン-2,3-ジカルボキシイミド0.2g(0.62mmol)を1,4-ジオキサン10mlに溶かし、そこへアリルアミン0.06g(1.1mmol)を加え、室温で2日間攪拌した。反応終了後、溶媒および過剰のアリルアミンを減圧留去し、析出した固体をジエチルエーテルと少量のクロロホルム溶液とで洗浄し、減圧乾燥することにより、3-(3-クロロ-2,6-ジエチルフェニルアミノカルボニル)ピロロ[1,2-b]ピリダジン-2-カルボン酸アリルアミド0.2gを得た。

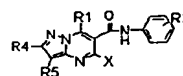
融点213-214℃

前記実施例に準じて合成した本発明化合物の構造式と物性を、前記実施例を含め、それぞれ第1表および第2表に示す。

【第1表】

【0072】

【化18】



【0073】

【表1】

化合物

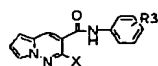
No.	R1	R4	R5	X	R3	物性値
1-1	Me	Me	H	CONHt-Bu	2,6-Et <sub>2</sub> -3-Cl	mp 276°C(dec.)
1-2	Me	Me	H	CONHCH <sub>2</sub> CH=CH <sub>2</sub>	2,6-Et <sub>2</sub> -3-Cl	mp 271-273°C

19				20			
1- 3	Me	H H	CONHi-Bu	2,6-Et <sub>2</sub> -3-Cl	mp 277-279°C		
1- 4	Me	H H	CONHCH <sub>2</sub> CH=CH <sub>2</sub>	2,6-Et <sub>2</sub> -3-Cl	mp 289°C(dec.)		
1- 5	Me	H H	CONHCH <sub>2</sub> CH=CH <sub>2</sub>	2-Me-3-Cl	mp 271-272°C		
1- 6	Me	H H	CONHi-Bu	2-Me-3-Cl	mp 264-266°C		
1- 7	Me	H H	CONHEt	2-Me-3-Cl	mp 260-262°C		
1- 8	Me	H H	CONHCH <sub>2</sub> C≡CH	2-Me-3-Cl	mp 259-261°C		
1- 9	Me	H Cl	CONHCH <sub>2</sub> CH=CH <sub>2</sub>	2,6-Et <sub>2</sub> -3-Cl	mp 305°C<		
1-10	Me	H CN	CONHCH <sub>2</sub> CH=CH <sub>2</sub>	2,6-Et <sub>2</sub> -3-Cl	mp 263-265°C(dec.)		
1-11	Me	H Cl	CONHi-Bu	2,6-Et <sub>2</sub> -3-Cl	mp 305-307°C		
1-12	Me	H Br	CONHCH <sub>2</sub> CH=CH <sub>2</sub>	2,6-Et <sub>2</sub> -3-Cl	mp 302-304°C		
1-13	Me	H Br	CONHi-Bu	2,6-Et <sub>2</sub> -3-Cl	mp 308-310°C		
1-14	Me	H H	CONHEt	2,6-Et <sub>2</sub> -3-Cl	mp 300°C<		
1-15	Me	H H	CONHPr	2,6-Et <sub>2</sub> -3-Cl	mp 302-303°C		
1-16	Me	H Me	CONHCH <sub>2</sub> CH=CH <sub>2</sub>	2,6-Et <sub>2</sub> -3-Cl	mp 294-295°C		
1-17	Me	H Me	CONHi-Bu	2,6-Et <sub>2</sub> -3-Cl	mp 307-308°C		
1-18	Me	H Me	CONHEt	2,6-Et <sub>2</sub> -3-Cl	mp 305°C<		
1-19	Me	H H	CON(CH <sub>2</sub> ) <sub>4</sub>	2-Me-3-Cl	mp 191-193°C		
1-20	Me	H H	CON(CH <sub>2</sub> ) <sub>4</sub>	2,6-Et <sub>2</sub> -3-Cl	mp 225-227°C		
1-21	MeOCH <sub>2</sub>	Me H	CONHCH <sub>2</sub> CH=CH <sub>2</sub>	2,6-Et <sub>2</sub> -3-Cl	mp 218-221°C		
1-22	Me	H MeO	CONHCH <sub>2</sub> CH=CH <sub>2</sub>	2,6-Et <sub>2</sub> -3-Cl	mp 294-295°C		
1-23	Me	H MeO	CONHEt	2,6-Et <sub>2</sub> -3-Cl	mp 303-305°C		
1-24	MeOCH <sub>2</sub>	H H	CONHCH <sub>2</sub> CH=CH <sub>2</sub>	2,6-Et <sub>2</sub> -3-Cl	mp 218-221°C		
1-25	MeOCH <sub>2</sub>	H H	CONHEt	2,6-Et <sub>2</sub> -3-Cl	mp 277-279°C(dec.)		
1-26	MeOCH <sub>2</sub>	H H	CON(CH <sub>2</sub> ) <sub>4</sub>	2,6-Et <sub>2</sub> -3-Cl	mp 188-189°C		
1-27	Me	H Cl	CONHCH <sub>2</sub> CH=CH <sub>2</sub>	2-Me-3-Cl	mp 254-258°C		
1-28	Me	H Cl	CON(CH <sub>2</sub> ) <sub>4</sub>	2-Me-3-Cl	mp 226-229°C		
1-29	Me	H Cl	CONHEt	2,6-Et <sub>2</sub> -3-Cl	mp 300°C<		
1-30	Me	H Cl	CON(CH <sub>2</sub> ) <sub>4</sub>	2,6-Et <sub>2</sub> -3-Cl	mp 250-252°C		
1-31	MeSCH <sub>2</sub>	H H	CON(CH <sub>2</sub> ) <sub>4</sub>	2,6-Et <sub>2</sub> -3-Cl	mp 167-169°C		
1-32	Me	H Cl	CONHNHEt	2-Me-3-Cl	mp 191-195		
1-33	MeS(O)CH <sub>2</sub>	H H	CON(CH <sub>2</sub> ) <sub>4</sub>	2,6-Et <sub>2</sub> -3-Cl	mp 127-131°C		
1-34	MeSO <sub>2</sub> CH <sub>2</sub>	H H	CON(CH <sub>2</sub> ) <sub>4</sub>	2,6-Et <sub>2</sub> -3-Cl	mp 184-187°C		
1-35	MeSCH <sub>2</sub>	H Cl	CON(CH <sub>2</sub> ) <sub>4</sub>	2,6-Et <sub>2</sub> -3-Cl	mp 160-163°C		
1-36	Me	H Me	CON(CH <sub>2</sub> ) <sub>4</sub>	2,6-Et <sub>2</sub> -3-Cl	mp 223-226°C		
1-37	MeSCH <sub>2</sub>	H Cl	CONHEt	2,6-Et <sub>2</sub> -3-Cl	mp 285-288°C		
1-38	MeSO <sub>2</sub> CH <sub>2</sub>	H H	CONHEt	2,6-Et <sub>2</sub> -3-Cl	mp 242-244°C		
1-39	Me	H Cl	CONCH <sub>2</sub> CH(OH)Me	2-Me-3-Cl	mp 266-267°C		
1-40	Me	H Cl	CONHMe	2,6-Et <sub>2</sub> -3-Cl	mp 300°C<		
1-41	Me	H Cl	CONMeEt	2,6-Et <sub>2</sub> -3-Cl	mp 198-200°C		
1-42	Me	H Cl	CONHc-Pr	2,6-Et <sub>2</sub> -3-Cl	mp 300°C<		
1-43	Me	H Cl	CONHCH <sub>2</sub> c-Pr	2,6-Et <sub>2</sub> -3-Cl	mp 300°C<		
1-44	Me	H Cl	CONHCH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> F	2,6-Et <sub>2</sub> -3-Cl	mp 300°C<		
1-45	Me	H Cl	CONHCH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> OH	2,6-Et <sub>2</sub> -3-Cl	mp 300°C<		
1-46	Me	H Cl	CONHCH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> Cl	2,6-Et <sub>2</sub> -3-Cl	mp 222-224°C		
1-47	Me	H H	CONHMe	2,6-Et <sub>2</sub> -3-Cl	mp 300°C<		
1-48	Me	H H	CONHCH <sub>2</sub> c-Pr	2,6-Et <sub>2</sub> -3-Cl	mp 300°C<		
1-49	Me	H H	CONMe <sub>2</sub>	2,6-Et <sub>2</sub> -3-Cl	mp 192-195°C		
1-50	Me	H H	CONHCH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> Cl	2,6-Et <sub>2</sub> -3-Cl	mp 237-239°C		
1-51	Me	H Cl	CONHi-Pr	2,6-Et <sub>2</sub> -3-Cl	mp 197-199°C		
1-52	Me	H H	CONHCH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> F	2,6-Et <sub>2</sub> -3-Cl	mp 282-284°C		

21	22
1-53 Me H OH CONHCH <sub>2</sub> CH=CH <sub>2</sub>	2,6-Et <sub>2</sub> -3-Cl mp 251-253°C(dec.)

【第2表】  
【0074】  
【化19】

\*【0075】  
【表2】



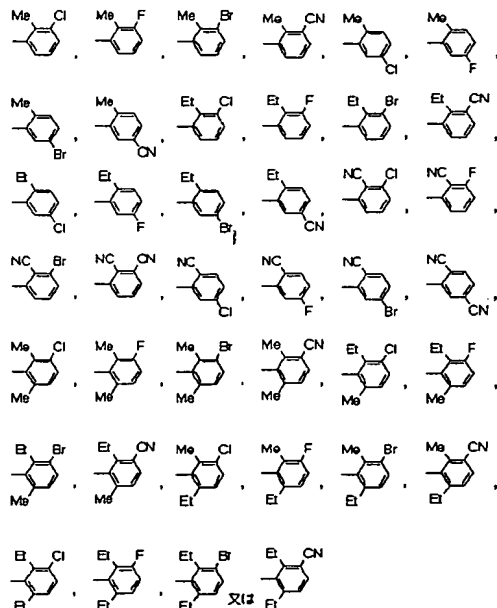
\*

化合物 No.	X	R 3	物性値
2- 1	CONHCH <sub>2</sub> CH=CH <sub>2</sub>	2-Me-3-Cl	mp 214-216°C
2- 2	CONHET	2-Me-3-Cl	mp 227-229°C
2- 3	CONHi-Bu	2-Me-3-Cl	mp 195-197°C
2- 4	CONHi-Bu	2,6-Et <sub>2</sub> -3-Cl	mp 192-194°C
2- 5	CONHCH <sub>2</sub> CH=CH <sub>2</sub>	2,6-Et <sub>2</sub> -3-Cl	mp 213-214°C
2- 6	CONHET	2,6-Et <sub>2</sub> -3-Cl	mp 226-228°C

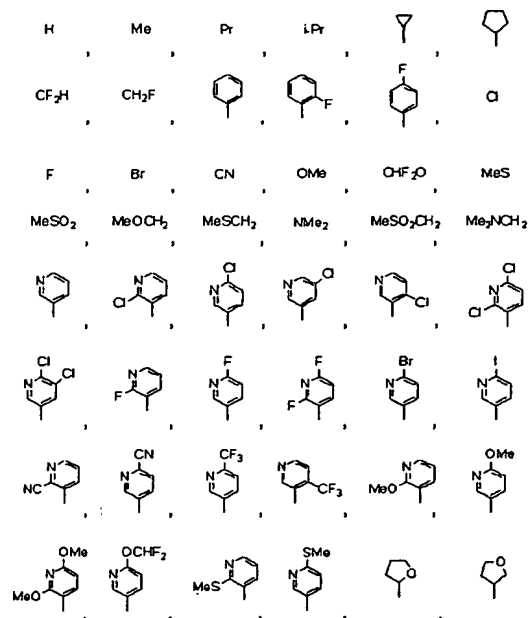
前記スキームあるいは実施例に進じて合成される本発明化合物を、前記実施例を含めて第3表に例示するが、本発明はこれらに限定されるものではない。なお、表中、Ph(R3)は以下に示す構造を表わす。

【0076】

【化20】



30



【0079】

【化22】

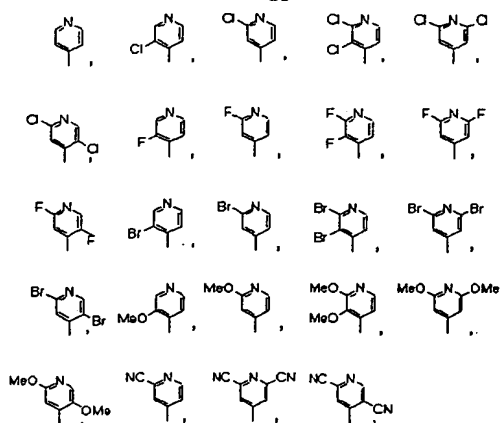
40

【0077】また、R1は以下の構造を表わす。

【0078】

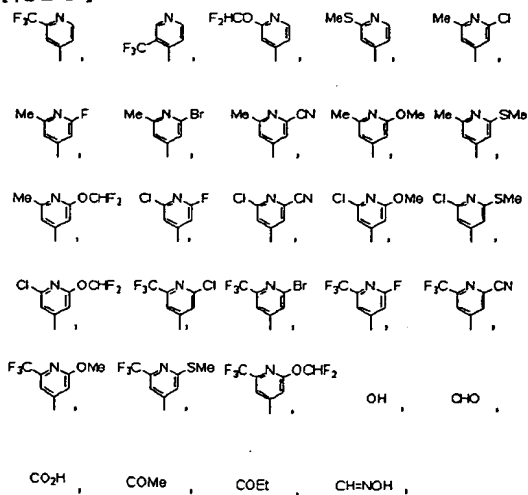
【化21】

23



【0080】

【化23】



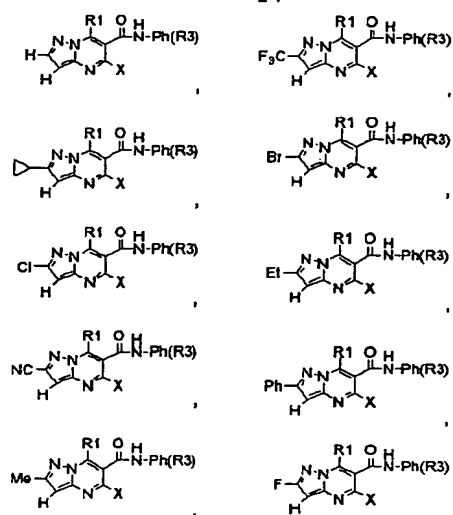
$C(Me)=NOH$  ,     $CH=NOMe$     または     $C(Me)=NOMe$

【0081】〔第3表〕

【0082】

【化24】

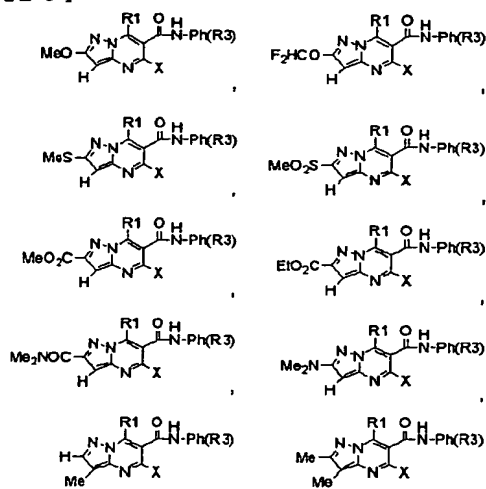
10



【0083】

【化25】

20

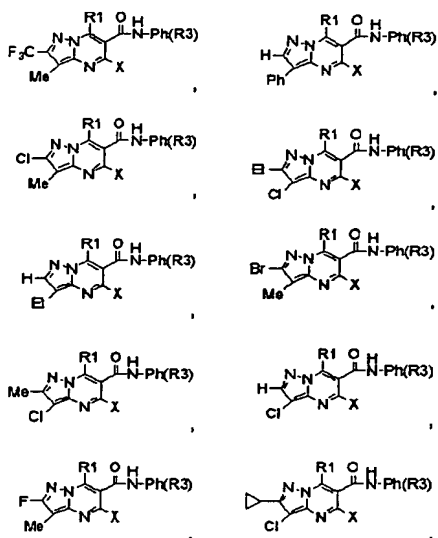


30

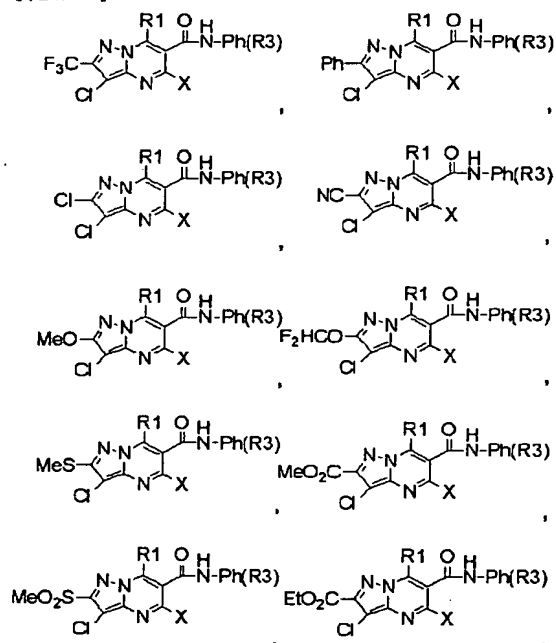
【0084】

【化26】

25



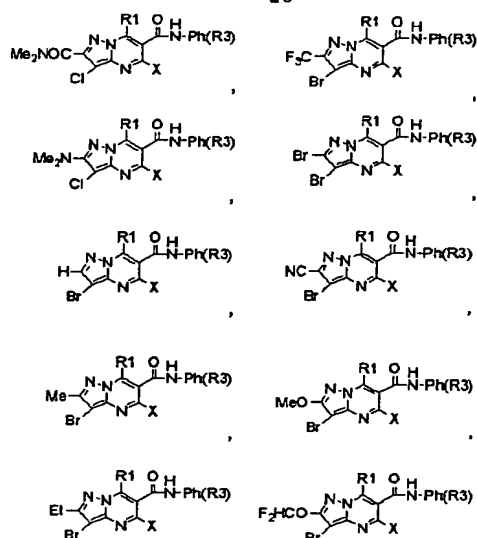
[0085]  
[化27]



[0086]  
[化28]

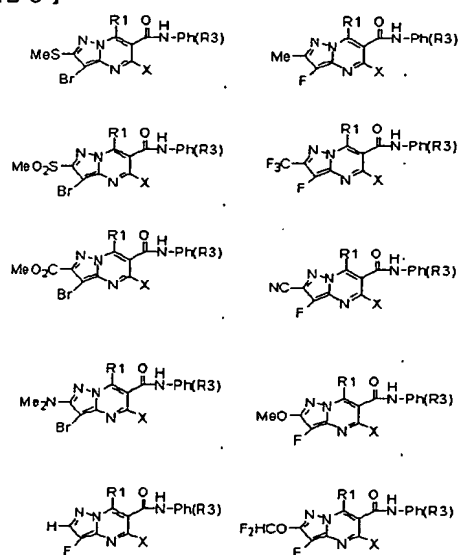
1

10



[0087]  
[化29]

20



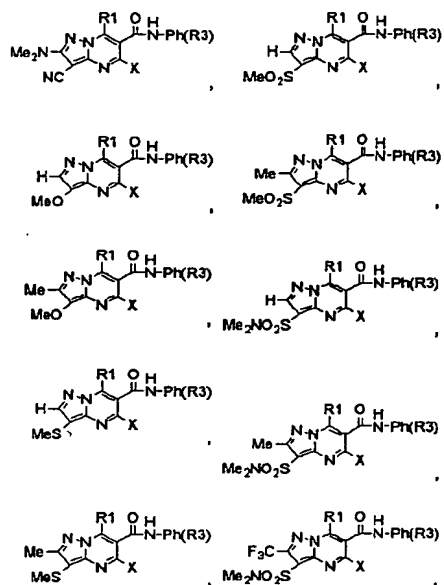
30

[0088]  
[化30]

40



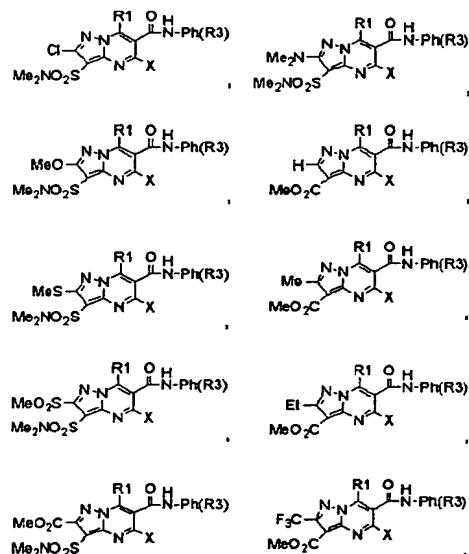
28



110

【 0 0 9 1 】

20 【化33】

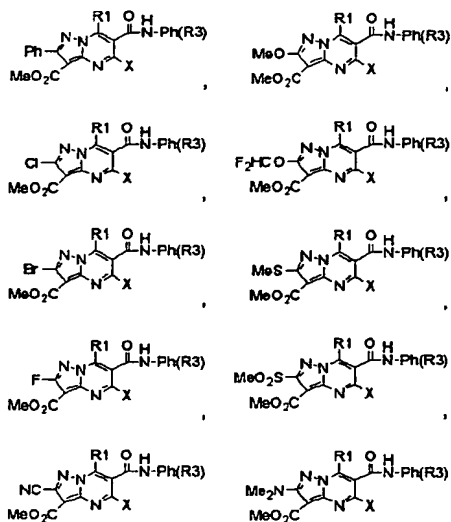
Me<sub>2</sub>

【 0 0 9 2 】

【化34】

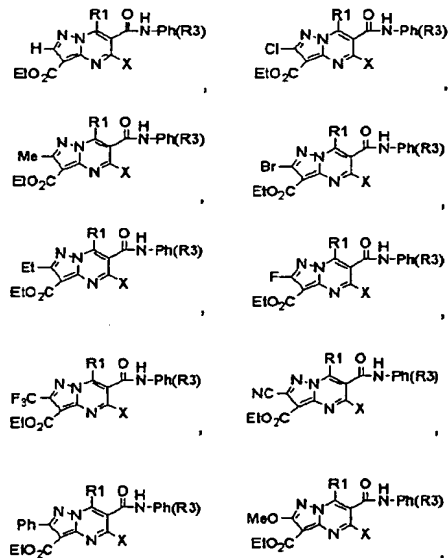
(16)

29



【0093】

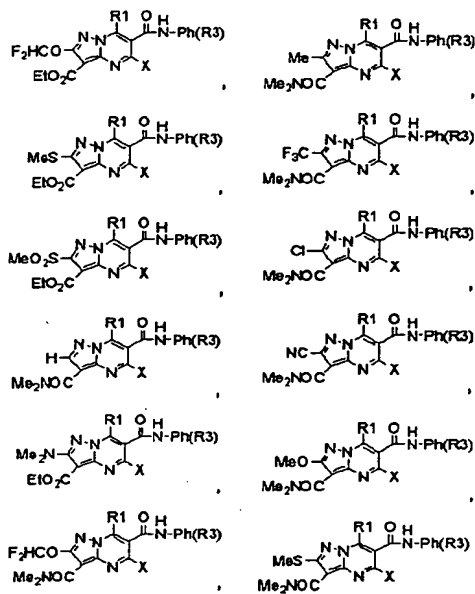
【化35】



【0094】

【化36】

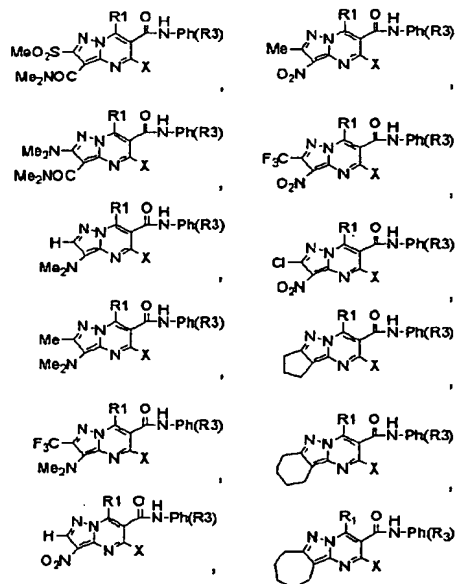
30



10

【0095】

20 【化37】

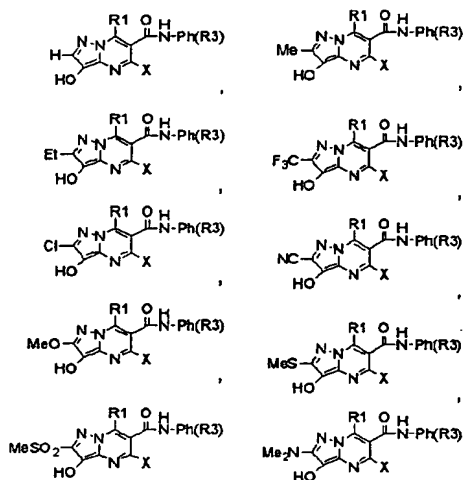


30

【0096】

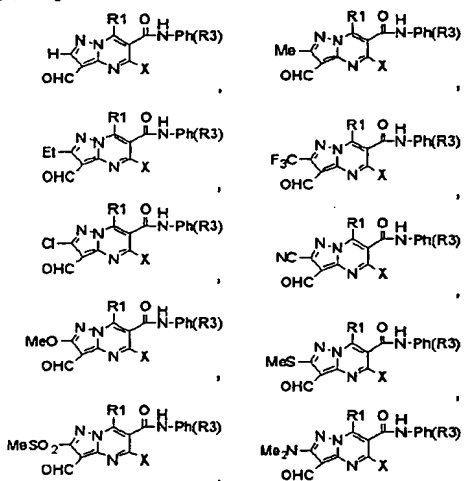
40 【化38】

31



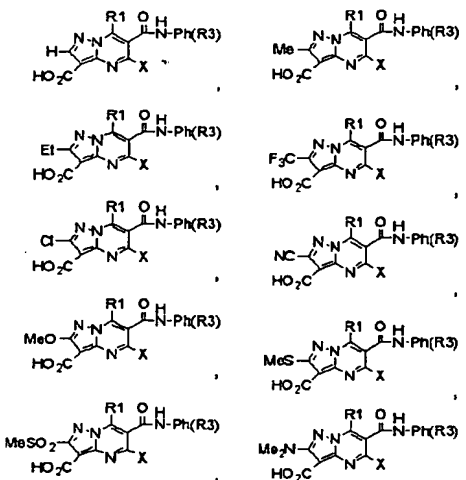
[0097]

[化39]



[0098]

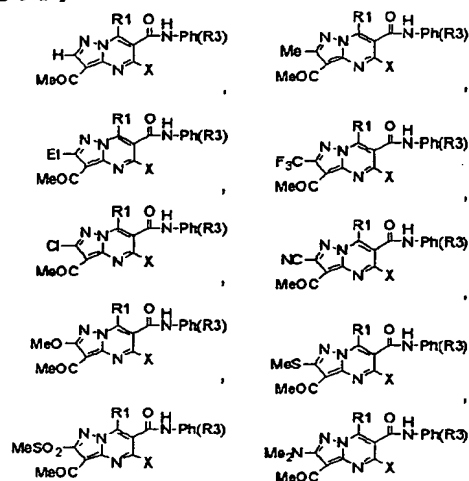
[化40]



[0099]

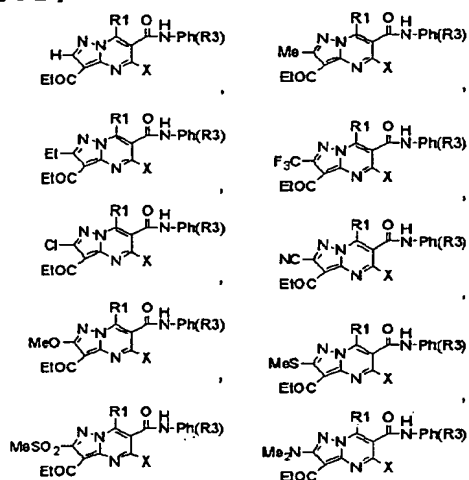
32

[化41]



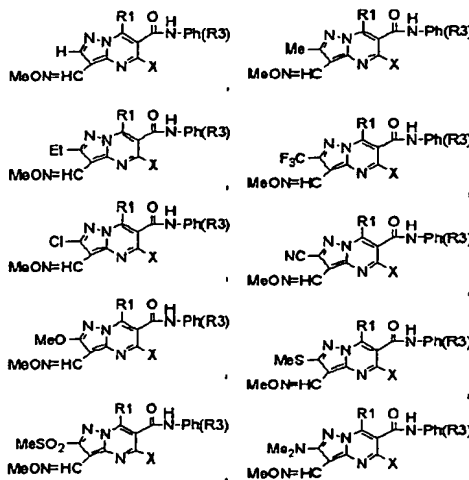
[0100]

[化42]



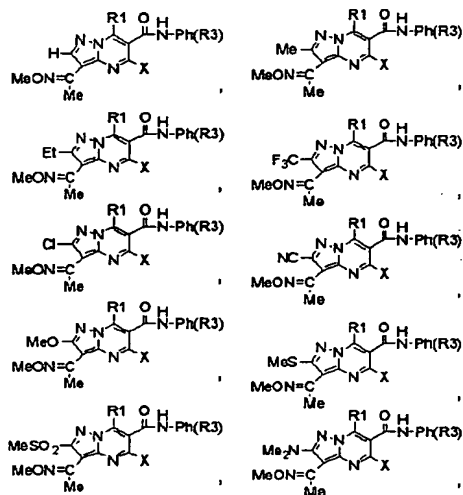
[0101]

[化43]



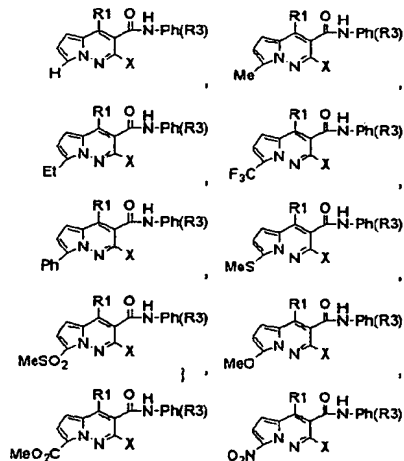
【0102】

【化44】



【0103】

【化45】



【0104】

【化46】

\*

10

20

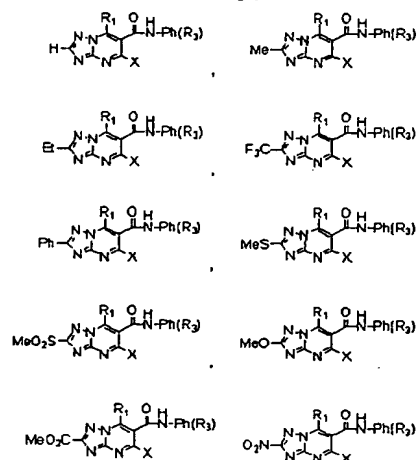
30

\*

X

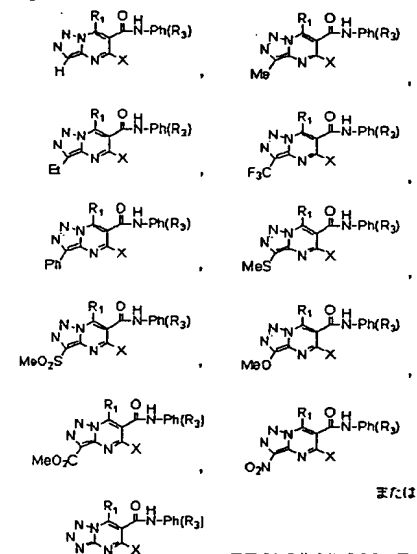
CONH<sub>2</sub>, CONHMe, CONHEt, CONHPr, CONHi-Pr, CONHBu, CONHi-Bu, CONHs-Bu, CONHt-Bu, CONHPen, CONHHex, CONHCH<sub>2</sub>CH<sub>2</sub>Cl, CONHCH<sub>2</sub>CH<sub>2</sub>Br, CONHCH<sub>2</sub>CH<sub>2</sub>F, CONHCH<sub>2</sub>CCl<sub>3</sub>, CONHCH<sub>2</sub>CF<sub>3</sub>, CONH(CH<sub>2</sub>)<sub>3</sub>Cl, CONH(CH<sub>2</sub>)<sub>3</sub>Br, CONH(CH<sub>2</sub>)<sub>3</sub>F, CONHc-Pr, CONHc-Pen, CONHc-Hex, CONHCH<sub>2</sub>c-P, CONHCH<sub>2</sub>CH=CH<sub>2</sub>, CONHCH<sub>2</sub>CH=CHMe, CONHCH<sub>2</sub>CH=CHCl, CONHCH<sub>2</sub>C≡CH, CONHCH(Me)C≡CH, CONHCH<sub>2</sub>C≡CMe, CONHPh, CONHCH<sub>2</sub>Ph, CONHCH(Me)Ph, CO-1-ピペリジノ, CO-1-ピロリジノ, CONHMe, CO

34



【0105】

【化47】



または

で表される化合物群において

【0106】

【表3】

$N(Me)_2$ ,  $CON(Me)Et$ ,  $CON(Me)Pr$ ,  $CON(Me)i-Pr$ ,  $CON(Me)Bu$ ,  $CON(Me)i-Bu$ ,  $CON(Me)s-Bu$ ,  $CON(Me)t-Bu$ ,  $CON(Me)Pen$ ,  $CON(Me)Hex$ ,  $CON(Me)CH_2CH_2Cl$ ,  $CON(Me)CH_2CH_2Br$ ,  $CON(Me)CH_2CH_2F$ ,  $CON(Me)CH_2CCl_3$ ,  $CON(Me)CH_2CF_3$ ,  $CON(Me)(CH_2)_3Cl$ ,  $CON(Me)(CH_2)_3Br$ ,  $CON(Me)(CH_2)_3F$ ,  $CON(Me)c-Pr$ ,  $CON(Me)c-Pen$ ,  $CON(Me)c-Hex$ ,  $CON(Me)CH_2c-Pr$ ,  $CON(Me)CH_2CH=CH_2$ ,  $CON(Me)CH_2CH=CHMe$ ,  $CON(Me)CH_2CH=CHCl$ ,  $CON(Me)CH_2C\equiv CH$ ,  $CON(Me)CH(Me)C\equiv CH$ ,  $CON(Me)CH_2C\equiv CMe$ ,  $CON(Me)Ph$ ,  $CON(Me)CH_2Ph$ ,  $CON(Me)CH(Me)Ph$ ,  $CONHt$ ,  $CON(Et)_2$ ,  $CON(Et)Pr$ ,  $CON(Et)i-Pr$ ,  $CON(Et)Bu$ ,  $CON(Et)i-Bu$ ,  $CON(Et)s-Bu$ ,  $CON(Et)t-Bu$ ,  $CON(Et)Pen$ ,  $CON(Et)Hex$ ,  $CON(Et)CH_2CH_2Cl$ ,  $CON(Et)CH_2CH_2Br$ ,  $CON(Et)CH_2CH_2F$ ,  $CON(Et)CH_2CCl_3$ ,  $CON(Et)CH_2CF_3$ ,  $CON(Et)(CH_2)_3Cl$ ,  $CON(Et)(CH_2)_3Br$ ,  $CON(Et)(CH_2)_3F$ ,  $CON(Et)c-Pr$ ,  $CON(Et)c-Pen$ ,  $CON(Et)c-Hex$ ,  $CON(Et)CH_2c-Pr$ ,  $CON(Et)CH_2CH=CH_2$ ,  $CON(Et)CH_2CH=CHMe$ ,  $CON(Et)CH_2CH=CHCl$ ,  $CON(Et)CH_2C\equiv CH$ ,  $CON(Et)CH(Me)C\equiv CH$ ,  $CON(Et)CH_2C\equiv CMe$ ,  $CON(Et)Ph$ ,  $CON(Et)CH_2Ph$ ,  $CON(Et)CH(Me)Ph$ ,  $CONHCH_2CH=CH_2$ ,  $CON(Me)CH_2CH=CH_2$ ,  $CON(Et)CH_2CH=CH_2$ ,  $CON(Pr)CH_2CH=CH_2$ ,  $CON(i-Pr)CH_2CH=CH_2$ ,  $CON(Bu)CH_2CH=CH_2$ ,  $CON(i-Bu)CH_2CH=CH_2$ ,  $CON(s-Bu)CH_2CH=CH_2$ ,  $CON(t-Bu)CH_2CH=CH_2$ ,  $CON(Pen)CH_2CH=CH_2$ ,  $CON(Hex)CH_2CH=CH_2$ ,  $CON(CH_2CH=CH_2)CH_2CH_2Cl$ ,  $CON(CH_2CH=CH_2)CH_2CH_2Br$ ,  $CON(CH_2CH=CH_2)CH_2CH_2F$ ,  $CON(CH_2CH=CH_2)CH_2CCl_3$ ,  $CON(CH_2CH=CH_2)CH_2CF_3$ ,  $CON(CH_2CH=CH_2)(CH_2)_3Cl$ ,  $CON(CH_2CH=CH_2)(CH_2)_3Br$ ,  $CON(CH_2CH=CH_2)(CH_2)_3F$ ,  $CON(CH_2CH=CH_2)c-Pr$ ,  $CON(CH_2CH=CH_2)c-Pen$ ,  $CON(CH_2CH=CH_2)c-Hex$ ,  $CON(CH_2CH=CH_2)CH_2c-Pr$ ,  $CON(CH_2CH=CH_2)CH_2CH=CH_2$ ,  $CON(CH_2CH=CH_2)CH_2CH=CHMe$ ,  $CON(CH_2CH=CH_2)CH_2CH=CHCl$ ,  $CON(CH_2CH=CH_2)CH_2C\equiv CH$ ,  $CON(CH_2CH=CH_2)CH(Me)C\equiv CH$ ,  $CON(CH_2CH=CH_2)CH_2C\equiv CMe$ ,  $CON(CH_2CH=CH_2)Ph$ ,  $CON(CH_2CH=CH_2)CH_2Ph$ ,  $CON(CH_2CH=CH_2)CH(Me)Ph$ ,  $CONHNH_2$ ,

$CONHNHMe$ ,  $CONHNHt$ ,  $CONHNHPr$ ,  $CONHNHi-Pr$ ,  $CONHNHBu$ ,  $CONHNHi-Bu$ ,  $CONHNHs-Bu$ ,  $CONHNHt-Bu$ ,  $CONHNHPen$ ,  $CONHNHHex$ ,  $CONHNHCH_2CH_2Cl$ ,  $CONHNHCH_2CH_2Br$ ,  $CONHNHCH_2CH_2F$ ,  $CONHNHCH_2CCl_3$ ,  $CONHNHCH_2CF_3$ ,  $CONHNH(CH_2)_3Cl$ ,  $CONHNH(CH_2)_3Br$ ,  $CONHNH(CH_2)_3F$ ,  $CONHNHc-Pr$ ,  $CONHNHc-Pen$ ,  $CONHNHc-Hex$ ,  $CONHNHCH_2c-Pr$ ,  $CONHNHCH_2CH=CH_2$ ,  $CONHNHCH_2CH=CHMe$ ,  $CONHNHCH_2CH=CHCl$ ,  $CONHNHCH_2C\equiv CH$ ,  $CONHNH$

37

38

CH (Me) C≡CH, CONHNNHCH<sub>2</sub>C≡CMe, CONHNNHPh, CONHNNHCH<sub>2</sub>Ph, CONHNNHCH (Me) Ph, CONH-1-ピロリジノ, CONH-1-ビペリジノ, CON (Me) NHMe, CON (Me) NMe<sub>2</sub>, CON (Me) N (Me) Et, CON (Me) N (Me) Pr, CON (Me) N (Me) i-Pr, CON (Me) N (Me) Bu, CON (Me) N (Me) i-Bu, CON (Me) N (Me) s-Bu, CON (Me) N (Me) t-Bu, CON (Me) N (Me) Pen, CON (Me) N (Me) Hex, CON (Me) N (Me) CH<sub>2</sub>CH<sub>2</sub>Cl, CON (Me) N (Me) CH<sub>2</sub>CH<sub>2</sub>Br, CON (Me) N (Me) CH<sub>2</sub>CH<sub>2</sub>F, CON (Me) N (Me) CH<sub>2</sub>CCl<sub>3</sub>, CON (Me) N (Me) CH<sub>2</sub>CF<sub>3</sub>, CON (Me) N (Me) (CH<sub>2</sub>)<sub>3</sub>Cl, CON (Me) N (Me) (CH<sub>2</sub>)<sub>3</sub>Br, CON (Me) N (Me) (CH<sub>2</sub>)<sub>3</sub>F, CON (Me) N (Me) c-Pr, CON (Me) N (Me) c-Pen, CON (Me) N (Me) c-Hex, CON (Me) N (Me) CH<sub>2</sub>c-Pr, CON (Me) N (Me) CH<sub>2</sub>CH=CH<sub>2</sub>, CON (Me) N (Me) CH<sub>2</sub>CH=CHMe, CON (Me) N (Me) CH<sub>2</sub>CH=CHCl, CON (Me) N (Me) CH<sub>2</sub>C≡CH, CON (Me) N (Me) CH (Me) C≡CH, CON (Me) N (Me) CH<sub>2</sub>C≡CMe, CON (Me) N (Me) Ph, CON (Me) N (Me) CH<sub>2</sub>Ph, CON (Me) N (Me) CH (Me) Ph, CONHOH, CONHOMe, CONHOEt, CONHOPr, CONHOi-Pr, CONHOBu, CONHOi-Bu, CONHOS-Bu, CONHOCH<sub>2</sub>CH=CH<sub>2</sub>, CONHOCH<sub>2</sub>CH=CHMe, CONHOCH<sub>2</sub>CH=CHCl, CONHOCH<sub>2</sub>C≡CH, CONHOCH (Me) C≡CH, CONHOCH<sub>2</sub>CF<sub>3</sub>, CONHO (CH<sub>2</sub>)<sub>3</sub>F, CONHO (CH<sub>2</sub>)<sub>3</sub>F, CONHOCH<sub>2</sub>CH=CHCl, CONHOc-Pr, CONHOCH<sub>2</sub>c-Pr, CONHOc-Pen, CON (Me) OH, CON (Me) OMe, CON (Me) OEt, CON (Me) OPr, CON (Me) Oi-Pr, CON (Me) OBu, CON (Me) Oi-Bu, CON (Me) Os-Bu, CON (Me) OCH<sub>2</sub>CH=CH<sub>2</sub>, CON (Me) OCH<sub>2</sub>CH=CHMe, CON (Me) OCH<sub>2</sub>CH=CHCl, CON (Me) OCH<sub>2</sub>C≡CH, CON (Me) OCH (Me) C≡CH, CON (Me) OCH<sub>2</sub>CF<sub>3</sub>, CON (Me) O (CH<sub>2</sub>)<sub>3</sub>F, CON (Me) O (CH<sub>2</sub>)<sub>3</sub>F, CON (Me) OCH<sub>2</sub>CH=CHCl, CON (Me) Oc-Pr, CON (Me) OCH<sub>2</sub>c-Pr, CON (Me) Oc-Pen

第3表中、「Me」とあるのはメチル基を、「Et」とあるのはエチル基を、「Pr」とあるのはプロピル基を、「Bu」とあるのはブチル基を、「Pen」とあるのはペンチル基を、「Hex」とあるのはヘキシル基を、「Ph」とあるのはフェニル基をそれぞれ表わす。また、「c-」とあるのはシクロを、「i-」とあるのはイソを、「t-」とあるのはターシャリーを、それぞれ表わす。

【0107】本発明化合物のあるものは畑地、非耕地用除草剤として、土壌処理、茎葉処理のいずれの処理方法に於いても、イヌホウズキ (*Solanum nigrum*)、チョウセンアサガオ (*Datura stramonium*)等に代表されるナス科 (*Solanaceae*) 雑草、イチビ (*Abutilon theophrasti*)、アメリカキンゴジカ (*Sida spinosa*)等に代表されるアオイ科 (*Malvaceae*) 雑草、マルバアサガオ (*Ipomoea purpurea*)等のアサガオ類 (*Ipomoea* spp.)やヒル

ガオ類 (*Calystegia* spp.)等に代表されるヒルガオ科 (*Convolvulaceae*) 雑草、イヌビユ (*Amaranthus lividus*)、アオビユ (*Amaranthus retroflexus*)等に代表されるヒユ科 (*Amaranthaceae*) 雑草、オナモミ (*Xanthium pennsylvanicum*)、ブタクサ (*Ambrosia artemisiifolia*)、ヒマワリ (*Helianthus annuus*)、ハキダメギク (*Galinsoga ciliata*)、セイヨウトグアザミ (*Cirsium arvense*)、ノボロギク (*Senecio vulgaris*)、ヒメジョオン (*Eriogonum annuus*)等に代表されるキク科 (*Compositae*) 雑草、イヌガラシ (*Rorippa indica*)、ノハラガラシ (*Sinapis arvensis*)、ナズナ (*Capsella bursapastoris*)等に代表されるアブラナ科 (*Cruciferae*) 雑草、イヌタデ (*Polygonum blumei*)、ソバカズラ (*Polygonum convolvulus*)等に代表されるタデ科 (*Polygonaceae*) 雑草、スベリヒユ (*Portulaca oleracea*)等に代表されるスベリヒユ科 (*Portulacaceae*) 雑草、シロザ (*Chenop*

40

50

odium album)、コアカザ (*Chenopodium ficifolium*)、  
 ホウキギ (*Kochia scoparia*)等に代表されるアカザ科  
 (*Chenopodiaceae*) 雑草、ハコベ (*Stellaria media*)等  
 に代表されるナデシコ科 (*Caryophyllaceae*)雑草、オオ  
 イヌノフグリ (*Veronica persica*) 等に代表されるゴマ  
 ノハグサ科 (*Scrophulariaceae*) 雑草、ツクサ (*Comm  
 elina communis*) 等に代表されるツクサ科 (*Commelin  
 aceae*)雑草、ホトケノザ (*Lamium amplexicaule*)、ヒメ  
 オドリコソウ (*Lamium purpureum*) 等に代表されるシソ  
 科 (*Labiatae*) 雑草、コニシキソウ (*Euphorbia supin  
 a*)、オオニシキソウ (*Euphorbia maculata*) 等に代表  
 されるトウダイグサ科 (*Euphorbiaceae*)雑草、ヤエムグ  
 ラ (*Galium spurium*)、アカネ (*Rubia akane*)等に代表  
 されるアカネ科 (*Rubiaceae*)雑草、スミレ (*Viola mand  
 shurica*)等に代表されるスミレ科 (*Violaceae*)雑草、ア  
 メリカツノクサネム (*Sesbania exaltata*)、エビスグサ  
 (*Cassia obtusifolia*) 等に代表されるマメ科 (*Legumin  
 osae*)雑草等の広葉雑草 (*Broad-leaved weeds*)、野生  
 ソルガム (*Sorghum bicolor*)、オオクサキビ (*Panicum  
 dichotomiflorum*)、ジョンソングラス (*Sorghum halep  
 ense*)、イヌビエ (*Echinochloa crus-galli* var. *crus-g  
 alli*)、ヒメイヌビエ (*Echinochloa crus-galli* var.  
*praticola*)、栽培ビエ (*Echinochloa utilis*)、メシバ  
 バ (*Digitaria adscendens*)、カラスムギ (*Avenafatu  
 a*)、オヒシバ (*Eleusine indica*)、エノコログサ (*Set  
 aria viridis*)、スズメノテッポウ (*Alopecurus aequal  
 is*)等に代表されるイネ科雑草 (*Graminaceous weed  
 s*)、ハマスゲ (*Cyperus rotundus*, *Cyperus esculentu  
 s*) 等に代表されるカヤツリグサ科雑草 (*Cyperaceous w  
 eeds*)等の各種畑地雑草 (*Cropland weeds*)に低薬量で  
 高い殺草力を有する。

【0108】又、水田用除草剤として湛水下の土壌処理  
 及び茎葉処理のいずれの処理方法に於いても、ヘラオモ  
 ダカ (*Alisma canaliculatum*)、オモダカ (*Sagittaria  
 trifolia*)、ウリカワ (*Sagittaria pygmaea*) 等に代表  
 されるオモダカ科 (*Alismataceae*) 雑草、タマガヤツリ  
 (*Cyperus difformis*)、ミズガヤツリ (*Cyperus seroti  
 nus*)、ホタルイ (*Scirpus juncooides*)、クログワイ (*El  
 eocharis kuroguwai*) 等に代表されるカヤツリグサ科  
 (*Cyperaceae*) 雑草、アゼナ (*Lindernia pyxidaria*)  
 等に代表されるゴマノハグサ科 (*Scrophulariaceae*) 雑  
 草、コナギ (*Monochoria vaginalis*) 等に代表されるミ  
 ズアオイ科 (*Potenderiaceae*) 雑草、ヒルムシロ (*Pota  
 mogeton distinctus*) 等に代表されるヒルムシロ科 (*Po  
 tamogetonaceae*) 雑草、キカシグサ (*Rotala indica*)等  
 に代表されるミソハギ科 (*Lythraceae*) 雑草、タイヌビ  
 エ (*Echinochloa oryzicola*)、ヒメタイヌビエ (*Echi  
 nochloa crus-galli* var. *formosensis*)、イヌビエ (*Echi  
 nochloa crus-galli* var. *crus-galli*) 雑草等、各種、  
 水田雑草 (*Paddy weeds*)に低薬量で高い殺草力を有す

る。

【0109】さらに本発明化合物のあるものは、重要作  
 物であるイネ、コムギ、オオムギ、ソルゴー、落花生、  
 トウモロコシ、大豆、棉、ビート等に対して高い安全性  
 を有する。

【0110】本発明化合物を除草剤として施用するにあ  
 たっては、一般には適当な担体、例えばクレー、タル  
 ク、ベントナイト、尿素、硫酸アンモニウム、クルミ  
 粉、珪藻土、ホワイトカーボン等の固体担体あるいは  
 水、アルコール類 (イソプロパノール、ブタノール、エ  
 チレングリコール、ベンジルアルコール、フルフリルア  
 ルコール等)、芳香族炭化水素類 (トルエン、キシレ  
 ン、メチルナフタレン等)、エーテル類 (アニソール  
 等)、植物油 (大豆油、綿実油等)、ケトン類 (シクロ  
 ヘキサノン、イソホロン等)、エステル類 (酢酸ブチル  
 等)、酸アミド類 (N-メチルピロリドン等) 又はハロ  
 ゲン化炭化水素類 (クロロベンゼン等) などの液体担体  
 と混用して適用することができ、所望により界面活性  
 剤、乳化剤、分散剤、浸透剤、展着剤、増粘剤、凍結防  
 止剤、固結防止剤、安定剤などを添加し、液剤、乳剤、  
 水和剤、ドライフロアブル剤、フロアブル剤、粉剤、粉  
 剤等任意の剤型にて実用に供することができる。

【0111】また、本発明化合物は必要に応じて製剤又  
 は散布時に他種の除草剤、各種殺虫剤、殺ダニ剤、殺線  
 虫剤、殺菌剤、植物生長調節剤、共力剤、肥料、土壌改  
 良剤などと混合施用してもよい。

【0112】特に他の農薬と混合施用することにより、  
 施用薬量の減少による低コスト化、混合薬剤の相乗作用  
 によるスペクトラムの拡大や、より高い除草効果が期待  
 できる。この際、同時に複数の公知農薬との組み合わせ  
 も可能である。本発明化合物と混合使用する農薬の種類  
 としては、例えば、ファーム・ケミカルズ・ハンドブッ  
 ク (*Farm Chemicals Handbook*) 2000年版に記載され  
 ている化合物などがある。

【0113】本発明化合物の施用薬量は適用場面、施用  
 時期、施用方法、気象条件、製剤形態、土壌条件、栽培  
 作物等により差異はあるが一般には有効成分量としてヘ  
 クター (ha) 当たり0.0001~10kg程度、  
 好ましくは0.001~5kg程度が適当である。

【0114】次に具体的に本発明化合物を用いる場合の  
 製剤の配合例を示す。但し本発明の配合例は、これらの  
 みに限定されるものではない。なお、以下の配合例にお  
 いて「部」は重量部を意味する。

【0115】本発明化合物を使用するにあたっては、通  
 常適当な固体担体又は液体担体と混合し、更に所望によ  
 り界面活性剤、浸透剤、展着剤、増粘剤、凍結防止剤、  
 結合剤、固結防止剤、崩壊剤、消泡剤、防腐剤および分  
 解防止剤等を添加して、液剤、乳剤、水和剤、水溶剤、  
 顆粒水和剤、顆粒水溶剤、懸濁剤、乳濁剤、サスポエマ  
 ルジョン、マイクロエマルジョン、粉剤、粒剤およびゲ

ル剤等任意の剤型の製剤にて実用に供することができる。また、省力化および安全性向上の観点から、上記任意の剤型の製剤を水溶性包装体に封入して供することもできる。なお必要に応じて、製剤又は散布時に複数の他の除草剤、殺虫剤、殺菌剤、植物生長調整剤、肥料等と混合使用することも可能である。

【0116】固体担体としては、例えば石英、カオリナイト、パイロフィライト、セリサイト、タルク、ベントナイト、酸性白土、アタパルジャイト、ゼオライトおよび珪藻土等の天然鉱物質類、炭酸カルシウム、硫酸アンモニウム、硫酸ナトリウムおよび塩化カリウム等の無機塩類、合成珪酸ならびに合成珪酸塩が挙げられる。

【0117】液体担体としては、例えばエチレングリコール、プロピレングリコールおよびイソプロパノール等のアルコール類、キシレン、アルキルベンゼンおよびアルキルナフタレン等の芳香族炭化水素類、ブチルセロソルブ等のエーテル類、シクロヘキサノン等のケトン類、γ-ブチロラクトン等のエステル類、N-メチルピロリドンおよびN-オクチルピロリドン等の酸アミド類、大豆油、ナタネ油、綿実油およびヒマシ油等の植物油ならびに水が挙げられる。

【0118】これら固体および液体担体は、単独で用いても2種以上を併用してもよい。

【0119】界面活性剤としては、例えばポリオキシエチレンアルキルエーテル、ポリオキシエチレンアルキルアリールエーテル、ポリオキシエチレンスチリルフェニルエーテル、ポリオキシエチレンポリオキシプロピレンブロックコポリマー、ポリオキシエチレン脂肪酸エステル、ソルビタン脂肪酸エステルおよびポリオキシエチレンソルビタン脂肪酸エステル等のノニオン性界面活性剤、アルキル硫酸塩、アルキルベンゼンスルホン酸塩、リグニンスルホン酸塩、アルキルスルホコハク酸塩、ナフタレンスルホン酸塩、アルキルナフタレンスルホン酸塩、ナフタレンスルホン酸のホルマリン縮合物の塩、アルキルナフタレンスルホン酸のホルマリン縮合物の塩、ポリオキシエチレンアルキルアリールエーテル硫酸および燐酸塩、ポリオキシエチレンスチリルフェニルエーテル硫酸および燐酸塩、ポリカルボン酸塩およびポリスチレンスルホン酸塩等のアニオン性界面活性剤、アルキルアミン塩およびアルキル4級アンモニウム塩等のカチオン性界面活性剤ならびにアミノ酸型およびベタイン型等の両性界面活性剤が挙げられる。

【0120】これら界面活性剤の含有量は、特に限定されるものではないが、本発明の製剤100重量部に対し、通常0.05～20重量部の範囲が望ましい。また、これら界面活性剤は、単独で用いても2種以上を併用してもよい。

【0121】次に本発明化合物を用いる場合の製剤の配合例を示す。但し本発明の配合例は、これらのみに限定されるものではない。なお、以下の配合例において

「部」は重量部を意味する。

〔水和剤〕

本発明化合物	0.1～80部
固体担体	5～98.9部
界面活性剤	1～10部
その他	0～5部
その他として、例えば固結防止剤、分解防止剤等が挙げられる。	

〔乳剤〕

10 本発明化合物	0.1～30部
液体担体	45～95部
界面活性剤	4.9～15部
その他	0～10部
その他として、例えば展着剤、分解防止剤等が挙げられる。	

〔懸濁剤〕

本発明化合物	0.1～70部
液体担体	15～98.9部
界面活性剤	1～12部
20 その他	0.01～30部
その他として、例えば凍結防止剤、増粘剤等が挙げられる。	

〔顆粒水和剤〕

本発明化合物	0.1～90部
固体担体	0～98.9部
界面活性剤	1～20部
その他	0～10部
その他として、例えば結合剤、分解防止剤等が挙げられる。	

〔液剤〕

30 本発明化合物	0.01～70部
液体担体	20～99.99部
その他	0～10部
その他として、例えば凍結防止剤、展着剤等が挙げられる。	

〔粒剤〕

本発明化合物	0.01～80部
固体担体	10～99.99部
その他	0～10部
40 その他として、例えば結合剤、分解防止剤等が挙げられる。	

〔粉剤〕

本発明化合物	0.01～30部
固体担体	65～99.99部
その他	0～5部
その他として、例えばドリフト防止剤、分解防止剤等が挙げられる。	

【0122】使用に際しては上記製剤を水で1～10000倍に希釈して又は希釈せずに、有効成分が1ヘクタール(ha)当たり0.001～50kg、好ましくは0.



0.1～1.0 kgになるように散布する。

#### 【0123】製剤例

次に具体的に本発明化合物を有効成分とする農業製剤例を示すがこれらのみに限定されるものではない。なお、以下の配合例において「部」は重量部を意味する。

#### 【0124】〔配合例1〕水和剤

本発明化合物No. 1-1 20部  
 バイロフィライト 74部  
 ソルボール5039 4部  
 (非イオン性界面活性剤とアニオン性界面活性剤との混 10  
 合物：東邦化学工業(株)商品名)

カーブックス#80D 2部

(合成含水珪酸：塩野義製薬(株)商品名)

以上を均一に混合粉碎して水和剤とする。

#### 【0125】〔配合例2〕乳剤

本発明化合物No. 1-1 5部  
 キシレン 75部  
 N-メチルピロリドン 15部  
 ソルボール2680 5部

(非イオン性界面活性剤とアニオン性界面活性剤との混 20  
 合物：東邦化学工業(株)商品名)

以上を均一に混合して乳剤とする。

#### 【0126】〔配合例3〕懸濁剤(フロアブル剤)

本発明化合物No. 1-1 25部  
 アグリゾールS-710 10部

(非イオン性界面活性剤：花王(株)商品名)

ルノックス1000C 0.5部

(アニオン性界面活性剤：東邦化学工業(株)商品名)

キサントガム 0.2部

水 64.3部 30

以上を均一に混合した後、湿式粉碎して懸濁剤とする。

#### 【0127】〔配合例4〕顆粒水和剤(ドライフロアブル剤)

本発明化合物No. 1-1 75部

ハイテノールNE-15 5部

(アニオン性界面活性剤：第一工業製薬(株)商品名)

バニレックスN 10部

(アニオン性界面活性剤：日本製紙(株)商品名)

カーブックス#80D 10部

(合成含水珪酸：塩野義製薬(株)商品名)

以上を均一に混合粉碎した後、少量の水を加えて攪拌混合し、押出式造粒機で造粒し、乾燥して顆粒水和剤とする。

#### 【0128】〔配合例5〕粒剤

本発明化合物No. 1-1 5部

ベントナイト 50部

タルク 45部

以上を均一に混合粉碎した後、少量の水を加えて攪拌混合し、押出式造粒機で造粒し、乾燥して粒剤とする。

#### 【0129】〔配合例6〕粉剤

本発明化合物No. 1-1 3部

カーブックス#80D 0.5部

(合成含水珪酸：塩野義製薬(株)商品名)

カオリナイト 95部

リン酸ジイソプロピル 1.5部

以上を均一に混合粉碎して粉剤とする。

【0130】使用に際しては上記水和剤、乳剤、フロアブル剤、顆粒水和剤は水で50～1000倍に希釈して、有効成分が1ヘクタール(ha)当たり0.0001～1.0 kgになるように散布する。

【0131】次に、本発明化合物の除草剤としての有用性を以下の試験例において具体的に説明する。

【0132】〔試験例1〕湛水条件における雑草発生前処理による除草効果試験

33. 3 cm<sup>2</sup>のスチロールカップ中に沖積土壌を入れた後、水を入れて混和し水深4 cmの湛水条件とした。ノビエ、ホタルイ、コナギのそれぞれの種子を上記のポットに混播した後、2.5葉期のイネ苗を移植した。ポットを25～30℃の温室内に置いて植物を育成し、播種後1日目に水面へ所定の葉量になるように、配合例1に準じて調整した本発明化合物の水和剤を水で希釈して処理した。処理後3週間目に、イネおよび各種雑草に対する除草効果の調査を行った。0は影響なし、5は完全枯死を示す5段階評価である。結果を第4表に示す。

【0133】判定基準

5…殺草率90%以上(ほとんど完全枯死)

4…殺草率70%以上90%未満

3…殺草率40%以上70%未満

2…殺草率20%以上40%未満

1…殺草率5%以上20%未満

0…殺草率5%未満(ほとんど効果なし)

〔試験例2〕湛水条件における雑草生育期処理による除草効果試験

33. 3 cm<sup>2</sup>のスチロールカップ中に沖積土壌を入れた後、水を入れて混和し水深4 cmの湛水条件とした。ノビエの種子を上記のポットに混播した。ポットを25～30℃の温室内に置いて植物を育成し、ノビエ、ホタルイ、コナギが1～2葉期に達したとき、水面へ所定の葉量になるように、配合例1に準じて調整した本発明化合物の水和剤を水で希釈して処理した。処理後3週間目に、各種雑草に対する除草効果を試験例1の判定基準に従って調査を行った。結果を第5表に示す。

【0134】〔試験例3〕土壌処理による除草効果試験  
 縦21 cm、横13 cm、深さ7 cmのプラスチック製箱に殺菌した洪積土壌を入れ、メヒシバ、エノコログサ、カラスミギ、ブラックグラス、イチビ、ブタクサ、アオゲイトウ、シロザ、イヌタデ、オオイヌノフグリ、ハコベ、トウモロコシ、ダイズ、ワタ、コムギ、ビートの種子をそれぞれスポット状に播種し、約1.5 cm覆土した後、有効成分量が所定の割合となるように土壌表面へ小型ス

ブレーで均一に散布した。散布の際の薬液は、前記配合例1に準じて適宜調整された水和剤を水で希釈して用い、これを全面に散布した。薬液散布3週間後に植物に対する除草効果を試験例1の判定基準に従って調査を行った。結果を第6表に示す。

【0135】〔試験例4〕茎葉処理による除草効果試験  
縦21cm、横13cm、深さ7cmのプラスチック製箱に殺菌した洪積土壌を入れ、メヒシバ、エノコログサ、カラスミギ、ブラックグラス、イチビ、ブタクサ、アオゲイトウ、シロザ、イヌタデ、オオイヌノフグリ、ハコベ、  
10 トウモロコシ、ダイズ、ワタ、コムギ、ビートの種子をそれぞれスポット状に播種し、約1.5cm覆土した後、25～30℃の温室において植物を14日間育成し、有効成分量が所定の割合となるように茎葉部へ小型スプレーで均一に散布した。散布の際の薬液は、前記配合例1に準じ\*

\*て適宜調整された水和剤を水で希釈して用い、これを全面に散布した。薬液散布3週間後に植物に対する除草効果を試験例1の判定基準に従って調査を行った。結果を第7表に示す。

【0136】なお、各表中の記号は次の意味を示す。

A (ノビエ)、B (ホタルイ)、C (コナギ)、D (メヒシバ)、E (エノコログサ)、F (カラスミギ)、G (ブラックグラス)、H (イチビ)、I (ブタクサ)、J (アオゲイトウ)、K (シロザ)、L (イヌタデ)、  
10 M (オオイヌノフグリ)、N (ハコベ)、a (移植イネ)、b (トウモロコシ)、c (ダイズ)、d (ワタ)、e (コムギ)、f (ビート)〔第4表〕

【0137】

〔表4〕

化合物 No.	薬量 g/a	A	B	C	a
1-2	2.52	4	2	5	0
1-3	2.52	4	3	5	1
1-4	2.52	5	4	5	1
1-5	2.52	5	5	5	1
1-6	2.52	5	4	5	1
1-7	2.52	4	4	5	1
1-8	2.52	3	2	4	1
1-9	2.52	5	5	5	2
1-10	2.52	4	3	5	1
1-11	2.52	3	—	3	1
1-12	2.52	2	5	5	1
1-13	2.52	2	1	1	0
1-14	2.52	5	5	5	5
1-15	2.52	5	5	5	3
1-16	2.52	5	4	5	1
1-17	2.52	4	2	3	1
1-18	2.52	5	5	5	4
1-19	2.52	4	4	5	1
1-25	2.52	4	2	5	0
1-26	2.52	1	1	1	1
1-27	2.52	5	4	4	2
1-28	2.52	3	1	3	0
1-29	2.52	4	2	5	1
1-30	2.52	5	5	5	3
1-31	2.52	5	5	5	4
1-32	2.52	2	0	0	0
1-33	2.52	5	5	5	4
1-34	2.52	5	5	5	2
1-35	2.52	5	3	5	2
1-36	2.52	5	5	5	4
1-37	2.52	5	3	5	1

47					48
1-38	2. 52	5	2	5	1
1-39	2. 52	5	4	5	3
1-40	2. 52	2	0	0	0
1-41	2. 52	5	4	5	1
1-42	2. 52	3	2	5	0
1-43	2. 52	5	3	5	1
1-44	2. 52	3	3	5	1
1-45	2. 52	5	4	5	1
1-46	2. 52	5	4	5	2
1-47	2. 52	3	2	3	0
1-48	2. 52	4	3	5	1
1-49	2. 52	5	4	5	1
1-50	2. 52	5	4	5	3
1-51	2. 52	5	4	5	3
1-52	2. 52	5	4	5	1
1-53	2. 52	5	3	5	2
2- 1	2. 52	4	4	5	0
2- 2	2. 52	4	4	5	1
2- 3	2. 52	5	5	5	0
2- 4	2. 52	5	5	5	2
2- 5	2. 52	5	5	5	2
2- 6	2. 52	5	5	5	2

〔第5表〕  
〔0138〕

\*〔表5〕

\*

化合物 No.	薬量 g/a	A	B	C
1- 4	2. 52	5	3	3
1- 5	2. 52	4	2	3
1- 6	2. 52	4	3	3
1- 7	2. 52	4	2	2
1- 9	2. 52	4	2	3
1-10	2. 52	0	2	2
1-12	2. 52	2	0	2
1-14	2. 52	5	3	4
1-15	2. 52	5	2	3
1-16	2. 52	3	1	3
1-18	2. 52	4	3	3
1-19	2. 52	4	2	3
1-27	2. 52	4	1	3
1-30	2. 52	5	4	5
1-31	2. 52	5	4	5
1-33	2. 52	5	3	4
1-34	2. 52	5	3	4
1-35	2. 52	2	1	1
1-36	2. 52	5	4	5
1-37	2. 52	3	2	2
1-38	2. 52	2	1	2

49

50

1-39	2.52	1	1	2
1-41	2.52	5	3	3
1-45	2.52	1	2	3
1-46	2.52	2	1	2
1-49	2.52	3	2	2
1-50	2.52	4	2	3
1-51	2.52	2	1	1
1-52	2.52	3	2	1
1-53	2.52	2	1	2
2-1	2.52	4	2	2
2-2	2.52	4	2	2
2-3	2.52	4	2	2
2-4	2.52	4	2	3
2-5	2.52	5	3	3
2-6	2.52	5	3	3

〔第6表〕  
〔0139〕

\*〔表6〕

\*

化合物 No.	薬量 g/a	D	E	F	G	H	I	J	K	L	M	N	b	c	d	e	f
1-1	6.3	5	5	0	0	4	4	5	5	3	5	5	2	1	1	0	5
1-2	6.3	5	5	0	0	5	5	5	5	5	5	5	3	0	1	1	5
1-3	6.3	5	5	4	4	5	5	5	5	5	5	5	4	1	2	4	5
1-4	6.3	5	5	-	5	5	5	5	5	5	5	5	3	0	1	1	5
1-5	6.3	5	5	0	2	2	5	2	5	1	-	2	1	0	0	0	0
1-6	6.3	5	5	2	3	5	4	5	5	5	5	4	4	1	0	0	5
1-7	6.3	5	5	0	2	5	4	5	5	5	5	4	1	1	0	0	5
1-8	6.3	5	4	0	1	1	3	4	4	5	5	1	0	0	0	0	5
1-9	6.3	5	5	1	3	5	4	5	5	5	5	5	0	0	2	1	5
1-10	6.3	5	4	0	2	5	1	5	5	5	5	5	1	0	0	0	5
1-11	6.3	2	1	0	0	0	1	3	1	1	0	0	0	0	0	0	0
1-12	6.3	4	4	0	1	1	3	4	5	2	4	4	0	0	0	0	4
1-13	6.3	2	1	0	0	0	0	1	3	0	0	0	0	0	0	1	0
1-14	6.3	5	5	1	3	5	5	5	5	5	5	5	1	0	1	0	5
1-15	6.3	5	5	1	2	5	5	5	5	5	5	5	1	0	1	0	5
1-16	6.3	5	5	0	0	5	4	5	5	5	5	5	0	0	1	0	5
1-17	6.3	3	3	0	0	3	1	3	5	2	4	0	0	0	0	0	4
1-18	6.3	5	5	0	4	5	5	5	5	5	5	5	0	0	1	-	5
1-19	6.3	5	5	0	0	2	5	4	-	5	5	0	0	1	0	0	5
1-24	6.3	0	0	0	0	0	0	0	-	0	0	5	0	0	0	0	5
1-25	6.3	4	5	1	3	5	5	5	5	5	5	3	3	1	1	1	5
1-26	6.3	2	3	0	0	0	0	1	5	0	5	0	0	0	0	0	1
1-27	6.3	5	5	1	1	5	5	5	5	5	5	5	1	0	0	2	4
1-28	6.3	3	3	0	0	0	0	2	4	1	4	1	0	0	0	0	3
1-29	6.3	5	5	0	0	5	1	5	5	5	5	5	1	0	0	0	3
1-30	6.3	5	5	4	3	5	5	5	5	5	5	5	2	0	2	4	5
1-31	6.3	5	5	4	4	5	5	5	5	5	5	5	2	1	1	3	5
1-33	6.3	5	5	2	5	5	5	5	5	5	5	5	1	2	3	3	5

51																		52
1-34	6.3	5	5	5	4	5	4	5	5	5	5	5	4	3	2	3	5	
1-35	6.3	5	5	2	3	5	4	5	5	5	5	5	3	2	2	3	5	
1-36	6.3	5	5	3	2	5	5	5	5	5	5	5	1	2	4	2	5	
1-37	6.3	4	4	1	4	5	5	5	5	5	5	5	1	1	-	2	5	
1-38	6.3	5	5	2	1	5	5	5	5	5	5	2	1	1	-	1	5	
1-39	6.3	5	5	2	4	5	5	5	5	5	5	5	1	2	-	1	1	
1-40	6.3	2	3	0	0	4	-	5	5	-	4	2	2	0	-	0	5	
1-41	6.3	-	-	3	4	-	-	-	-	-	5	5	0	-	-	2	5	
1-42	6.3	-	-	2	1	-	-	-	-	-	5	5	-	-	-	0	5	
1-43	6.3	3	4	0	0	3	5	5	-	4	3	4	0	0	0	0	1	
1-44	6.3	4	4	3	3	2	3	4	-	4	3	5	2	0	0	0	4	
1-45	6.3	5	4	1	2	4	-	3	-	5	5	5	0	0	0	2	5	
1-46	6.3	5	5	4	2	5	5	5	-	5	5	5	3	1	4	2	5	
1-47	6.3	2	1	0	1	1	2	3	-	2	5	2	2	0	0	0	5	
1-48	6.3	5	5	3	2	5	3	4	-	4	5	5	4	0	0	3	5	
1-49	6.3	5	5	4	2	4	5	5	-	5	5	5	2	0	1	2	5	
1-50	6.3	5	5	2	4	5	5	5	5	5	5	5	2	-	-	1	5	
1-51	6.3	5	5	1	2	5	5	5	5	5	4	4	2	0	-	1	5	
1-52	6.3	5	5	4	3	5	5	5	5	5	5	4	5	4	-	4	5	
1-53	6.3	5	5	0	3	5	4	5	5	5	5	5	0	1	-	1	5	
2- 1	6.3	5	5	1	1	2	4	4	5	4	5	4	0	0	0	1	5	
2- 2	6.3	5	5	1	0	5	4	4	3	3	5	4	-	0	0	1	5	
2- 3	6.3	5	5	1	2	1	1	4	-	1	5	3	0	0	0	0	4	
2- 4	6.3	5	4	0	0	5	4	5	5	5	5	5	1	0	0	0	5	
2- 5	6.3	5	5	2	4	5	5	5	5	5	5	5	0	0	1	2	5	
2- 6	6.3	5	5	3	4	5	5	5	5	5	5	5	2	0	1	3	5	

〔第7表〕  
〔0 1 4 0〕

\* 【表7】

\*

化合物 No.	藥量 q/a	D	E	F	G	H	I	J	K	L	M	N	b	c	d	e	f
1- 1	6.3	3	2	0	0	1	2	2	5	5	1	-	1	1	1	0	1
1- 2	6.3	5	4	0	0	1	4	2	5	4	1	5	1	1	1	0	1
1- 3	6.3	5	4	2	5	5	5	4	5	5	5	5	4	2	2	3	5
1- 4	6.3	5	5	0	5	3	5	3	5	5	5	5	3	1	1	1	5
1- 5	6.3	5	5	0	0	5	4	5	5	5	5	4	1	2	2	0	5
1- 6	6.3	5	5	4	3	5	5	4	5	5	-	5	1	4	4	4	5
1- 7	6.3	5	5	5	3	5	4	5	5	5	-	4	3	2	4	3	5
1- 8	6.3	3	4	2	3	2	2	1	3	2	-	2	1	1	1	1	3
1- 9	6.3	5	5	5	4	5	5	5	5	5	-	5	2	2	4	4	5
1-10	6.3	5	5	5	4	5	4	5	5	5	-	5	2	2	3	3	5
1-11	6.3	1	1	0	0	2	1	2	2	2	0	0	1	1	1	0	0
1-12	6.3	3	3	0	0	3	2	5	5	5	3	3	1	1	1	0	2
1-13	6.3	2	2	0	0	0	1	2	1	2	0	0	0	1	0	0	0
1-14	6.3	5	5	2	2	4	4	4	5	4	5	5	3	2	2	4	5
1-15	6.3	5	4	4	3	4	3	4	5	5	4	5	1	2	1	2	5
1-16	6.3	5	5	3	2	5	3	5	5	5	5	4	4	2	2	1	5
1-17	6.3	1	1	0	0	1	1	2	3	1	0	0	2	1	0	0	0

53

54

1-18	6.3	5	5	3	4	5	4	5	5	5	5	5	4	3	3	3	5
1-19	6.3	5	5	3	5	5	5	5	5	5	5	4	2	4	5	2	5
1-24	6.3	0	0	0	0	1	1	2	5	1	2	5	1	1	0	0	4
1-25	6.3	3	4	5	4	3	1	3	4	5	0	4	1	1	1	4	4
1-26	6.3	3	3	4	1	4	-	5	5	5	5	3	1	2	2	2	4
1-27	6.3	5	5	5	4	5	5	5	5	5	5	5	1	3	5	4	5
1-28	6.3	2	3	2	1	2	2	2	4	2	2	1	1	3	2	1	1
1-29	6.3	4	4	3	2	1	1	2	-	4	2	4	1	1	0	1	4
1-30	6.3	5	5	5	4	5	5	5	5	5	5	5	3	4	5	4	5
1-31	6.3	5	5	5	4	5	5	5	5	5	5	5	4	5	5	4	5
1-32	6.3	1	0	0	0	1	1	2	2	1	0	0	1	2	1	0	0
1-33	6.3	5	5	5	5	5	5	5	5	5	5	5	4	5	5	4	5
1-34	6.3	5	5	5	5	5	5	5	5	5	5	5	4	5	5	4	5
1-35	6.3	5	5	2	3	5	5	5	5	5	5	5	3	5	5	2	5
1-36	6.3	5	5	5	4	5	5	5	5	5	5	5	2	5	5	3	5
1-37	6.3	2	2	1	4	4	-	5	5	5	5	5	2	2	-	1	5
1-38	6.3	2	2	2	3	5	5	5	5	5	5	4	2	2	2	1	5
1-39	6.3	3	3	5	4	5	5	5	5	5	5	4	1	3	-	4	1
1-40	6.3	1	0	2	0	4	4	4	3	3	4	2	1	3	-	0	1
1-41	6.3	5	5	4	3	5	-	-	-	-	5	5	1	1	-	3	5
1-42	6.3	2	2	0	4	-	-	-	-	-	3	3	0	1	-	0	3
1-43	6.3	0	0	1	1	2	2	1	-	1	0	4	0	1	0	0	0
1-44	6.3	2	1	1	1	1	1	2	-	1	3	4	2	1	1	1	4
1-45	6.3	1	1	4	3	2	2	1	-	1	4	5	0	1	2	2	5
1-46	6.3	5	4	5	5	5	5	5	-	5	5	5	4	2	3	3	5
1-47	6.3	0	0	0	0	1	2	0	-	2	2	0	1	1	1	0	0
1-48	6.3	2	2	4	3	4	2	1	-	3	3	4	3	1	2	2	3
1-49	6.3	4	5	4	5	5	5	5	-	5	5	5	5	2	4	3	5
1-50	6.3	5	5	5	4	5	5	5	5	5	5	5	2	2	-	3	5
1-51	6.3	5	4	3	2	5	5	5	5	5	5	5	2	2	1	4	5
1-52	6.3	5	5	5	4	3	5	5	5	5	5	5	4	2	-	3	2
1-53	6.3	4	4	4	4	2	4	5	5	5	5	5	5	2	-	4	3
2- 1	6.3	5	5	4	3	5	5	5	5	5	5	5	3	3	4	4	5
2- 2	6.3	5	5	4	1	5	-	4	5	5	5	4	4	3	4	1	5
2- 3	6.3	5	4	1	2	5	5	3	5	4	5	4	2	2	2	1	5
2- 4	6.3	5	5	2	1	5	5	5	5	5	5	5	2	4	4	2	5
2- 5	6.3	5	5	4	4	5	4	5	5	5	5	5	3	4	5	3	5
2- 6	6.3	5	5	5	2	5	5	5	5	5	5	5	4	4	5	-	5

フロントページの続き

(72)発明者 秋山 茂明  
千葉県船橋市坪井町72番地1 日産化学工業株式会社中央研究所内  
(72)発明者 渡辺 重臣  
埼玉県南埼玉郡白岡町大字白岡1470日産化学工業株式会社生物科学研究所内

(72)発明者 中平 国光  
埼玉県南埼玉郡白岡町大字白岡1470日産化学工業株式会社生物科学研究所内  
(72)発明者 大木 亨  
埼玉県南埼玉郡白岡町大字白岡1470日産化学工業株式会社生物科学研究所内

(72)発明者 濱田 暢之  
埼玉県南埼玉郡白岡町大字白岡1470日産化  
学工業株式会社生物科学研究所内

F ターム(参考) 4C050 AA01 BB04 BB05 BB06 CC08  
EE02 EE03 EE04 EE05 FF02  
FF03 GG02 GG03 HH02 HH04  
4H011 AB01 AB02 BA01 BB09 BC17  
BC18 BC19 BC20 DA14 DA15  
DA16 DD01 DD04 DH03 DH14

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning  
Operations and is not part of the Official Record**

**BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ BLACK BORDERS
- ☐ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- ☐ FADED TEXT OR DRAWING
- ☒ BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING
- ☐ SKEWED/SLANTED IMAGES
- ☐ COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS
- ☐ GRAY SCALE DOCUMENTS
- ☐ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT
- ☐ REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY
- ☐ OTHER: \_\_\_\_\_

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.**